

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2002 年 3 月 14 日 (14.03.2002)

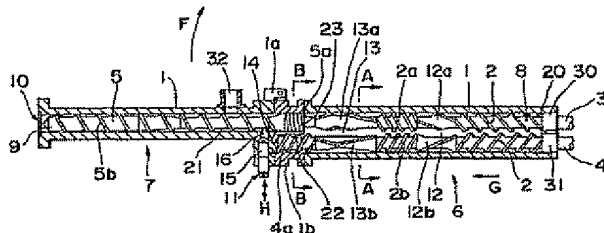
PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/20233 A1

- (51) 国際特許分類: **B29B 7/46**, 11/16, B29C 47/40 // B29K 105:16, C08L 101/00, C08K 9/00
- (71) 出願人 および
(72) 発明者: 友松龍蔵 (TOMOMATSU, Ryuzo) [JP/JP]. 平井隆宥 (HIRAI, Takahiro) [JP/JP]; 〒299-0205 千葉県袖ヶ浦市上泉1660番地 Chiba (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/07730
- (22) 国際出願日: 2001 年 9 月 6 日 (06.09.2001)
- (74) 代理人: 大谷 保(OHTANI, Tamotsu); 〒105-0001 東京都港区虎ノ門3丁目8番27号 巴町アネックス2号館 4階 Tokyo (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (81) 指定国 (国内): CN, KR, SG, US.
- (30) 優先権データ:
特願2000-271724 2000 年 9 月 7 日 (07.09.2000) JP
特願2000-305649 2000 年 10 月 5 日 (05.10.2000) JP
特願2001-55091 2001 年 2 月 28 日 (28.02.2001) JP
特願2001-240869 2001 年 8 月 8 日 (08.08.2001) JP
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): カルプ工業株式会社 (CALP CORPORATION) [JP/JP]; 〒101-0024 東京都千代田区神田和泉町1番地277 Tokyo (JP).
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: PROCESS FOR PRODUCING THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION AND THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION OBTAINED THEREBY

(54) 発明の名称: 熱可塑性樹脂組成物の製造方法及びそれにより得られた熱可塑性樹脂組成物



ficiently produced.

(57) Abstract: A process for producing a composition comprising at least a thermoplastic resin and/or a rubber and further containing a filler, in which filler compacts are used and which comprises melt-kneading at least a thermoplastic resin and/or a rubber together with the filler by means of a kneading extruder comprising a single-screw extruding part and a twin-screw kneading part which is equipped with screws having an L/D (length/diameter) in the twin-screw part of 12 or higher and has a dam at an end of the twin-screw part. Thus, a filled composition having an excellent balance among material properties can be ef-

[続葉有]



(57) 要約:

少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を含む組成物を製造する方法であって、充填剤として、圧縮された充填剤を用い、二軸部の L/D （長さ／径）が12以上であるスクリューを備え、かつ二軸部端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機を用いて、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を熔融混練させる製造方法により、物性バランスに優れた充填剤含有組成物を生産性良く製造することができる。

明 細 書

熱可塑性樹脂組成物の製造方法及びそれにより得られた熱可塑性樹脂組成物

技術分野

本発明は、物性バランスに優れ、充填剤を高濃度に含有し、マスターバッチとして好適な熱可塑性樹脂組成物を生産性良く製造する方法及び該製造方法により得られる熱可塑性樹脂組成物に関するものである。本発明の熱可塑性樹脂組成物は、家電品、自動車、OA（オフィスオートメーション）機器の分野、その他、マスターバッチを必要とする分野において有用である。

背景技術

従来から、プラスチック材料に剛性を付与する手段として、充填剤を充填する方法が、特に家電品、自動車、OA（オフィスオートメーション）機器の分野で多用されているが、近年、さらにプラスチック材料に対する物性の向上の要求とコスト低減の要求が高まっている。

そこで、充填剤を含有するマスターバッチと、ニート樹脂とをドライブレンドし、射出成形や押出成形等により成形する方法が提案されている。物性の向上を図るには、微細な充填剤を用いると効果的であるが、充填剤を微細化するとその嵩比重が小さくなり、このため、充填剤と樹脂とを溶融混練する際の混練速度（得られる組成物の吐出量）の低下、充填剤の分級に伴う組成物の品質安定性の低下、作業性等の低下の問題が、非微細化充填剤を用いた場合よりも

顕著なものとなっている。

例えば、自動車内外装部材や家電品の材料として多用されているタルク充填ポリプロピレン樹脂の場合、微細な充填剤の嵩比重を高めるために、圧縮したタルクを用いて上記問題を解決する試みがなされている（特開平4-306261号公報）。しかしながら、この圧縮タルクは、樹脂と共に混練する際の分散性が、非圧縮タルクと比べて劣ることから、混練により得られた組成物からなる成形体は、外観上の問題はないものの、十分な物性を有するものとはいえない。

一方、製品コストの低減を目的として、非微細化充填剤である通常のタルクを高濃度に充填したマスターバッチを用いて組成物を製造する方法がよく知られている。この製造法は、射出成形や押出成形等における成形時に、このマスターバッチをニートレジンで希釈して用いる。マスターバッチの製造方法としては、同方向噛合い型等の二軸押出機や単軸押出機等を用いて非微細化タルクを混練する方法があるが、この場合、タルクの分散性等は向上するが、タルクを高濃度に混練するには限界があり、かつタルクの粒径が大きいいため物性の向上は達成され得なかった。

また、製品コストの低減を目的として、充填剤を高濃度に充填したマスターバッチを用いて組成物を製造する場合、①充填剤が高濃度に充填されたマスターバッチを製造する場合、混練安定性に問題があり、収率が低下する、②マスターバッチにおける充填剤の濃度を高めた場合、このマスターバッチをニート樹脂で希釈して成形する際に、充填剤の分散性が低下するため成形物の物性が低下する、③高性能の製品が要求される分野では、粒径の小さい微細な充填剤が用いられているが、微細な充填剤を用いるほど、充填剤の分散性

が低下し、このため物性が低下する、などの問題があった。

このような充填剤の分散性低下の問題は、高流動化された材料への要望の高まりに伴って高流動ベースポリプロピレンを採用することによりさらに大きくなっており、特に高衝撃材料における衝撃性の低下が問題となっている。

従って、要求物性が厳しくない分野では、部分的にマスターバッチが採用されてはいるものの、使用実績のあるマスターバッチは、分散性が良好な粒径の大きい充填剤を含むマスターバッチ、または充填剤が低濃度のマスターバッチに限られていた。

そこで、上記問題を解決することができ、全配合品の物性と同等性能のものが得られれば、要求性能の厳しい分野、高流動性が要求される分野等への対応が可能となり、かつマスターバッチ生産時の収率向上、マスターバッチの高濃度化を図ること等による、更なる低コスト化が可能となる。

マスターバッチを製造する他の方法として、ゲレーション法や、バンバリーミキサーによる混練等のバッチ方式が採用されている。しかしながら、ゲレーション法は、タルクの粒径が小さいと、製造時間が長くなり、また、ベース樹脂のMI（メルトインデックス）、タルクの粒径やタルクの使用量等の影響を強く受けるため、所望の組成を有するマスターバッチを製造することができないという問題があり、タルクの分散性も不十分である。

ゲレーション法は、攪拌機を用いた製造法であるため、この方法でマスターバッチを製造しようとするると充填剤の分散性が困難であり、このため、充填剤に高価な表面処理を施すことにより分散性を向上させている。

ゲレーション法によりマスターバッチを製造する際に、複数種の

樹脂を用いると、充填剤の分散性や樹脂同士の相溶化が不十分となるため、用いる樹脂種は1種に限られるという制約がある。また、ゲレーション法によりマスターバッチを製造する際に、顔料を添加すると、製造機器の清掃作業に時間を要することとなるため、顔料が添加されたマスターバッチはゲレーション法では製造されていない。

従って、ゲレーション法で製造されるマスターバッチは、配合組成が単純なものであり、例えばブロックポリプロピレンとタルクを含有するマスターバッチは、主として、一般のトリムを製造する用途に供されるものである。ゲレーション法で製造されるマスターバッチは、後添加ゴムが必要なインパネ系部品の製造にも採用されているが、このマスターバッチにはゴムを仕込むことができないため、マスターバッチの希釈に用いるポリプロピレン系樹脂として、ブロックポリプロピレンにゴムをブレンドしたものをを用いている。このため、希釈用ポリプロピレン系樹脂を調製するにも混練コストがかかり、コストダウン効果が低減されるという問題があった。また、バンバリーミキサーによる混練では、生産性（作業性等）に問題があり、微細な充填剤を高濃度に混練するには限界があり、生産コストも高い等の問題があるため普及していない。

発明の開示

本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、微細な充填剤を高濃度に含有する熱可塑性樹脂組成物又はゴム組成物を生産性良く製造する方法及び該製造方法により得られる、物性バランスの優れる組成物を提供することを目的とするものである。

また、本発明は、微細な充填剤を高濃度に含有し、マスターバッ

チとして好適な熱可塑性樹脂組成物を生産性良く製造する方法及び該製造方法により得られる、物性バランスに優れる熱可塑性樹脂組成物を提供することを目的とするものである。

さらに、本発明は、マスターバッチを用いない通常の混練により製造した組成物と同等の物性を有する熱可塑性樹脂組成物を製造する方法及び該製造方法により得られる、物性バランスの優れる熱可塑性樹脂組成物を提供することを目的とするものである。

さらにまた、本発明は、複雑な配合を必要とする成形品の製造にも対応できる成形品用材料を安価に製造する方法、及び該材料を成形してなる成形品を提供することを目的とするものである。

本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意研究を重ねた結果、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと圧縮された充填剤を、特定の混練押出機を用いて混練押出することにより、生産性（組成物の吐出量、フィード部における充填剤の分級に伴う品質安定性、作業性）が向上し、かつ充填剤の高嵩比重化に伴う充填剤の分散不良が引き起こされることがなく、かつ得られる熱可塑性樹脂組成物等の物性が低下することがないことを見出した。

また、本発明者らは、熱可塑性樹脂と特定の充填剤とを特定の割合で使用し、これらの使用量に対して特定量の有機過酸化物の存在下で、特定の混練押出機を用いて混練押出しすることにより、生産性（組成物の吐出量、フィード部における充填剤の分級に伴う品質安定性、作業性）が向上し、かつ充填剤の高嵩比重化に伴う充填剤の分散不良が引き起こされることがなく、かつ得られる熱可塑性樹脂組成物等の物性が低下することがないことを見出した。すなわち、熱可塑性樹脂組成物において、充填剤、特に無機充填剤を高濃度に充填すると、組成物の吐出変動が大きくなるという問題があったが、

有機過酸化物を添加すると、この吐出変動を低減することができる。従って、サージング現象が発生するという問題がなくなるので、収率が向上し、ペレットのサイズを均一にすることができる。また、得られた熱可塑性組成物をマスターバッチとして用いると、成形時にニート樹脂で希釈した場合、無機充填剤の分散性が向上しているので、成形品の物性が低下しないことを見出した。

さらに、本発明者らは、熱可塑性樹脂組成物又はゴム組成物を製造する場合に、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと、圧縮された充填剤を溶融混練させてなるマスターバッチであって、充填剤として、圧縮された充填剤を用いた特定のマスターバッチ一種あるいはこのマスターバッチを少なくとも一種含むマスターバッチ二種以上を用い、これらのマスターバッチと、一種又は二種以上のニート樹脂とをドライブレンドすることにより、マスターバッチを用いない通常の混練により製造した組成物と同等の物性を有する熱可塑性樹脂組成物を得ることができることを見出した。

さらにまた、本発明者らは、(A) 熱可塑性樹脂及びゴムから選ばれる二種以上と、圧縮された充填剤を含有するマスターバッチと、(B) 熱可塑性樹脂及びゴムから選ばれる一種以上とをドライブレンドすることにより成形品用材料を製造する際に、(A) 成分の質量 A と (B) 成分の質量 B とが特定の関係を満たす場合に、自動車部品や家電品等の成形品を得るのに好適な成形品用材料が得られることを見出した。

本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、本発明は、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を含む組成物を混練押出機を用いて製造する方法であって、充填剤として、圧縮された充填剤を用い、混練押出機として、二軸

部の L/D（長さ／径）が 1.2 以上であるスクリューを備え、かつ二軸部端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機を用いて、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を溶融混練させることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物又はゴム組成物の製造方法を提供するものである（発明 1）。

また、本発明は、熱可塑性樹脂 50～100 質量部と嵩比重が 0.4 以上の圧縮された充填剤 50～90 質量部との合計量 100 質量部を、有機過酸化物 0.008～0.2 質量部の存在下で、単軸混練押出機、二軸混練押出機又は二軸混練部と単軸押出部を有する混練押出機を用いて、混練押出しすることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法を提供するものである（発明 2）。

さらに、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと、圧縮された充填剤を溶融混練させてなるマスターバッチと、二種以上のニート樹脂とをドライブレンドすることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法を提供するものである（発明 3-1）。

また、本発明は、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を溶融混練させてなるマスターバッチ二種以上と、一種又は二種以上のニート樹脂とをドライブレンドすることにより熱可塑性樹脂組成物を製造する方法であって、マスターバッチのうち少なくとも一種は、充填剤として、圧縮された充填剤を用いることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法を提供するものである（発明 3-2）。

さらにまた、本発明は、（A）熱可塑性樹脂及びゴムから選ばれる二種以上と、圧縮された充填剤を含有するマスターバッチと、（B）熱可塑性樹脂及びゴムから選ばれる一種以上とをドライブレンドすることにより成形品用材料を製造する方法であって、（A）

成分の質量を A、(B) 成分の質量を B としたときに、 $A / (A + B)$ が 0.1 ～ 0.6 であることを特徴とする成形品用材料の製造方法を提供するものである (発明 4)。

図面の簡単な説明

図 1 は本発明で用いる混練押出機の一例を示す断面図である。

図 2 は図 1 における A-A 断面図である。

図 3 は図 1 における B-B 断面図である。

1 はケーシング、2 はスクリー部、3 は第 1 軸、4 は第 2 軸、5 は延長軸部、6 は二軸スクリー部、7 は単軸スクリー部、8 は材料供給口、9 は端部、10 は吐出口を示す。

発明を実施するための最良の形態

発明 1 で用いる熱可塑性樹脂としては、ポリプロピレン、ポリエチレン等のポリオレフィン系樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリエステル樹脂、ポリアミド等が挙げられる。ポリプロピレンとしては、ホモポリプロピレン、ランダムポリプロピレン、ブロックポリプロピレンが挙げられ、ポリエチレンとしては、ホモポリエチレン、LDPE (低密度ポリエチレン)、LLDPE (直鎖状低密度ポリエチレン) が挙げられる。ゴムとしては、天然ゴム、合成ゴムが挙げられ、合成ゴムとしては、エチレン-プロピレンゴム、エチレン-オクテン・1 ゴム等のオレフィン系ゴム、スチレン-ブタジエンゴム、ニトリル-ブタジエンゴム、アクリロニトリル-ブタジエンゴム、クロロプレングム等が挙げられる。なお、以下の説明は主として熱可塑性樹脂についてのものであるが、ゴムの場合も同様である。

充填剤としてはタルクが好ましいが、嵩比重が小さいために生産性が問題となっている、タルク以外の充填剤を圧縮して用いることもできる。特に、最近、環境対策としての検討が増加している木粉がその一例として挙げられる。充填剤としては、この他に炭酸カルシウム、水酸化マグネシウム、カオリン（ケイ酸アルミニウム）、シリカ、パーライト、セリサイト、ケイソウ土、亜硫酸カルシウム、マイカ、チタン酸カリウムなどが挙げられる。

圧縮される前の充填剤の平均粒径は、レーザー式測定法による測定値で $15\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。平均粒径が $15\text{ }\mu\text{m}$ を超えると、圧縮による二次凝集体の形成が困難となり、また、嵩比重を高める効果が小さくなる。嵩比重を高めることにより生産性（組成物の吐出量、品質安定性、作業性）等が向上する点から、圧縮される前の充填剤の平均粒径は $8\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $6\text{ }\mu\text{m}$ 以下が特に好ましい。

発明1においては、これらの充填剤を圧縮することによりその嵩比重を高くしたものを用いる。ここで、嵩比重とは、〔充填剤の重量（g）／充填剤の体積（ cm^3 ）〕をいう。圧縮された充填剤の嵩比重は $0.4\sim 1.5$ が好ましく、より好ましくは $0.55\sim 1.5$ 、特に好ましくは $0.75\sim 1.5$ である。この嵩比重が 0.4 未満であると、充填剤が分級しやすくなり、かつ組成物の吐出量を向上させる効果が不十分となり、また、原料のプリブレンド工程において圧縮された充填剤が解砕しやすい。また、嵩比重が小さいと、高濃度混練の場合に樹脂が溶融せず、充填剤がダイスから噴出する傾向がある。一方、嵩比重が高いほど樹脂が溶融しやすくなり、高濃度混練が可能であるが、嵩比重が 1.5 を超えると、混練時に充填剤の分散性が良好でなくなるおそれがある。また、圧縮された充填剤の形状は、

分散性を良好なものとする点から、チップ状等のものではなく粒子状のものが好ましい。チップ状とは、長径が約 2 ～ 10 mm、短径が約 2 ～ 5 mm の直方体状のものをいう。粒子状とは、チップ状以外のものをいい、長径と短径とがほぼ等しい形状のものである。

圧縮充填剤の製造法は特に限定されるものではないが、充填剤を加圧処理又は減圧処理することにより得ることができる。加圧処理は、ローラコンパクタ（栗本工業社製，MRCP）により行うことができる。このローラコンパクタは、二本のロールで圧縮する片持ちタイプのものであり、一方のロールの圧力により嵩比重を調整することができる。圧縮充填剤の形状は、後工程のグラニューレーターで、粒子状やチップ状などに調整することができる。充填剤としては、以上に述べた平均粒径、嵩比重及び形状等を満たす点から、タルクが最も好ましい。

圧縮された充填剤の充填量（熱可塑性組成物又はゴム組成物における含有量）は、組成物中 1 ～ 90 質量％とすることができる。この充填量が 50 質量％を超える高濃度の充填剤を含有する熱可塑性樹脂組成物又はゴム組成物は、製品のコストダウンを目的としてマスターバッチとして使用することができる。但し、組成物中にて使用される圧縮充填剤の量が少ない場合は、50 質量％以下の濃度でもマスターバッチとして使用することができる。マスターバッチとして使用する場合、射出成形等の成形時に、例えばニートポリプロピレンとドライブレンドしてマスターバッチを希釈し、成形される。この場合、成形機にミキシングノズルを設置しなくても、発明 1 の製造方法により得られるマスターバッチは、物性が低下することがない。但し、顔料のマスターバッチ等を用いて成形時に着色する場合は、顔料の分散ムラが発生しやすいため、ミキシングノズルを設

置する方が好ましい。

発明 1 に係る組成物には、有機過酸化物、酸化防止剤、耐候剤、帯電防止剤、顔料等を、熱可塑性樹脂組成物の使用目的に応じて適宜添加することができる。

発明 1 の製造方法においては、特定の混練押出機として、二軸部の L/D (長さ/径) が 12 以上であるスクリューを備え、かつ二軸部端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機を用いる。二軸部の L/D は 20 以上が好ましく、より好ましくは 25 以上である。 L/D が 12 未満では充填剤の分散が不十分となり、充填剤を高濃度かつ分散性良く熱可塑性樹脂組成物に充填するができない。スクリューの回転数は、製造する組成物の特性に応じて 10 ~ 1500 rpm とすることができる。例えば、射出用途の高流動組成物を製造する場合、高流動組成物は粘度が低く、剪断応力を得る必要があるため、回転数が多い方が好ましい。一方、押出し用途の組成物を製造する場合、分子切断が起こり易くなり、粘度の低下が起こるため、スクリューの回転数は少ない方が好ましい。また、二軸部のスクリューには、同回転数よりも異なる回転数を与えることが、混練効果の点から好ましい。通常、回転数比は 1 : 1.1 程度とされる。

せき止め構造は、二軸部端部のスクリュー溝を浅く形成してケーシング (後述する図 1 参照) との間隙をわずかにし、かつ細かいピッチとしたものであり、このせき止め構造により、通過する配合成分の流量が最小限に規制されると共に、混練が充分に行われる。

二軸混練部のスクリューは、充填剤の分散と組成物の吐出量を考慮して、非噛合い異方向型であることが好ましい。スクリューの形状はロータ型であることが好ましい。また、このスクリューのネジ

構造は、後述する図 2 に示すような 2 条ネジであることが好ましい。スクリー及びロータは、それぞれセグメントになっており、必要に応じてロータの位置や L/D、あるいはチップクリアランス等で混練を調節することができる。

二軸混練部は、組成物の要求特性に応じて、混練部における配合成分の滞留時間が調整できるように、その終端に樹脂量を調節する機能を有することが好ましい。このような機能としては、オリフィス調整機能を例示することができる。また、二軸混練部と単軸押出部とは一体構造でことあるは必ずしも必要ではなく、上記の要件を満たす混練押出機であればタンデム型のものであってもかまわないが、一体構造であることが好ましい。

発明 1 において混練押出機としては、図 1 ～図 3 に示す特開平 7-88926 号公報に記載の連続混練押出装置を使用することができる。この装置は、金属製のケーシング 1 に内装された第 1 軸 3 と、これよりも短い第 2 軸 4 とを備えたものであり、基部側から（図 1 において右側から）供給された配合成分は、溶融、混練されて先端側に送られ、吐出される。

図 1 は装置の平面の断面を示し、図 2 は図 1 における A-A 断面図であり、図 3 は図 1 における B-B 断面図である。図 1 に示すように、ケーシング 1 は全体筒状に形成されており、略中央で左右に 2 分割されている。分割部分は蝶番 1 a により回転可能に支持され、矢示 F 方向に折れ曲がるようになっている。なお、このケーシング 1 の分割部分には別部材とした接続部材 1 b が介挿されている。

ケーシング 1 内には、円筒状シリンダ 2 1、2 つの円筒状シリンダを連結したまゆ型シリンダ 2 0、及び接続部材 1 b 内に形成された 2 つの軸受けシリンダ 2 2 及び 2 3 が形成されている。まゆ型シ

リング 20 内には、スクリュー部 2 を各々形成した第 1 軸 3 及び第 2 軸 4 が並列に配置されている。これら第 1 軸 3 及び第 2 軸 4 は、スクリュー基部 30 及び 31 を介してケーシング 1 に嵌挿されている。これら第 1 軸 3 と第 2 軸 4 の基端部は、ケーシング 1 外部に設置した図示しないギアボックスに挿入され、ベアリングで回転自在に支持されている。

また、第 2 軸 4 の先端の送出スクリュー部 4a は、この部分とシリンドラ 22 との間に溶融樹脂が介在することにより所定位置に保持されるので、第 2 軸 4 全体が回転自在に支持される。同様に、第 1 軸 3 の中間部の送出スクリュー部 5a は、この部分とシリンドラ 23 との間に溶融樹脂が介在することにより一定位置に保持されるので、第 1 軸 3 全体が回転自在に支持される。

そして、第 1 軸 3 及び第 2 軸 4 の中央部分は互いに接触しないように対峙し、これらの中途には一対ずつのミキシングロータ部 12 及び 13 が各々設けられている。このミキシングロータ部 12 及び 13 は、対向する第 1 ロータ部 12a, 12b 及び第 2 ロータ部 13a, 13b からなっており、図示のように互いに離れた位置に形成されている。そして、第 1 ロータ部 12a と第 2 ロータ部 13a との間には第 2 スクリュー 2a が、また、第 1 ロータ部 12b と第 2 ロータ部 13b との間には第 2 スクリュー 2b が各々形成されている。

第 1 軸 3 は延長軸部 5 を有しており、この延長軸部 5 は円筒状シリンドラ 21 内に回転自在に内装され、この全長にわたってスクリュー 5b が形成されている。この延長軸部 5 の基端側は接続部材 1b 内に保持され、この部分にはせき止め構造として、スクリュー溝を浅く形成してケーシング 1 との間隙をわずかにし、かつ細かいピッ

チとした流量規制スクリー部 5 a が形成されている。この流量規制スクリー部 5 a 部では、通過する配合成分の流量が最小限に規制されると共に、配合成分の混練が充分に行われるようになっている。上記のような構成により、ケーシング 1 内には第 1 軸 3 及び第 2 軸 4 が並列する二軸スクリー部 6 と、延長軸部 5 部分からなる単軸スクリー部 7 とが形成されている。ケーシング 1 における第 1 軸 3 及び第 2 軸 4 の各々の基端部の付近には、二軸スクリー部 6 に連通する材料供給口 8 が形成されている。この材料供給口 8 には、図示しない供給装置から配合成分が送られる。

一方、ケーシング 1 における延長軸部 5 の先端部 9 側には、組成物の吐出口 10 が設けられている。さらにケーシング 1 において延長軸部 5 の基端部側に脱揮口 32 が形成されている。延長軸部 5 の基端部側におけるケーシング 1 には、バルブ部 11 が設けられている。このバルブ部 11 は次のように構成されている。

まず、送出スクリー部 4 a の先端側に空室 14 を形成し、この空室 14 の一部に小径な通路 16 を設けて、この空室 14 とシリンダ 21 とを連通させている。空室 14 内には外部から筒状の弁体 15 を挿通させ、この弁体 15 は矢印 H 方向において前進後退動可能となっている。そして弁体 15 が通路 16 に接近するほど空室 14 の容積が小さくなるので、配合成分の流路が狭くなるようになっている。

バルブ部 11 は、二軸スクリー部 6 と単軸スクリー部 7 とを連通するものであり、単軸スクリー部 7 へ至る溶融樹脂をバイパスさせて流量を調整するものである。そして第 2 軸 4 の一端には送出スクリー部 4 a が形成され、流量規制スクリー部 5 a によりせき止められたほとんどの溶融樹脂を集めてバルブ部 11 を介して、

ケーシング 1 内に樹脂を圧送するようになっている。

なお前記流量調節機構としては他の構成としてもよく、例えば第 1 軸 3 を軸方向に移動可能として、第 1 軸 3 とこの周囲にあるケーシング内面に形成した凹凸部により弁体を形成し、流路の開閉度を調整する構造にすることも可能である。次に、上記の連続混練押出装置の動作について説明する。材料供給口 8 より投入された配合成分は、第 1 軸 3 及び第 2 軸 4 のスクリー部 2 により矢示 G 方向に送られ、第 1 ロータ部 1 2 a, 1 2 b により粗練りが行なわれ、樹脂が半熔融状態となって樹脂材料の密度が上昇する。このように樹脂の密度を上昇させることにより、第 2 スクリュー 2 a, 2 b での樹脂の搬送能力が高められ押出量を多くすることができる。このときの第 1 軸 3 及び第 2 軸 4 の回転数は 1 0 ～ 1 5 0 0 r p m である。

第 2 スクリュー 2 a, 2 b で送られた樹脂材料は第 2 ロータ部 1 3 a, 1 3 b で完全に熔融、混練が行われる。熔融、混練された樹脂は、送出スクリー部 4 a によって空室 1 4 内へ送られ、弁体 1 5 によって流量を調節されながら通路 1 6 を通過してケーシング 1 内に送られる。このように流量を調節することにより、二軸混練部 6 での配合成分の混練滞留時間及び配合成分の充填度を調整できるので、バルブ部 1 1 を作動させることによって混練度合いを自由に設定できる。このため樹脂の状態に応じてバルブ部 1 1 の開閉度をコントロールして、配合成分に常に均一な混練を与えることができる。

また、二組のロータ部である第 1 ロータ部 1 2 及び第 2 ロータ部 1 3 を設けたので、樹脂の熔融、混練作用が強化され押出量が大幅に増加する。さらに、接続部材 1 b 内の流量規制スクリー部 5 a 及び送出スクリー部 4 a は各々、独立に支持されており、これら

とシリンダ 2 2 及び 2 3 との間に樹脂が充満することにより軸受作用が生じるため、高回転域で各スクリーがカジリを起こすことを防止できる。

そして、上記のようにして溶融、混練調整された組成物は、単軸スクリー部 7 へ送られ、脱揮口 3 2 から必要な脱揮がされた後、延長軸部 5 にて順次送られて吐出口 1 0 から押出される。

発明 1 の製造方法により得られる組成物のうち、熱可塑性樹脂がポリプロピレンであって充填剤がタルクであるものは、高性能であることを要求される自動車内外装部材を形成するための組成物として好適なものである。また、発明 1 の製造方法によれば、充填剤が高濃度に充填されたマスターバッチを得ることができ、このマスターバッチは、タルクが高濃度に充填されたマスターバッチを必要とする自動車内外装部材や家電品の材料として有用なものである。なお、現行のマスターバッチは、ゲレーション法により製造されるものであり、配合の自由度がない。具体的には、ゲル化時における造粒の可否は、配合組成に制約を受け、また、ゴム系のマスターバッチの製造は困難である。これに対し、発明 1 の製造方法は、配合の制約を受けることがなく、目的に応じて所望の配合とすることができる。発明 2 で用いる熱可塑性樹脂としては、発明 1 において例示したものと同様のものが挙げられる。発明 2 においてはポリオレフィン系樹脂が好ましく、その中でもポリプロピレンが好ましい。熱可塑性樹脂は一種を単独で用いても二種以上を組み合わせ用いてもよい。なお、熱可塑性樹脂の流動性は、用途に応じて適宜選ぶことができるが、流動性の高い（メルトインデックス（MI）の高い）ものが好ましい。例えば発明 2 の製造方法により得られた熱可塑性樹脂組成物をマスターバッチとして用いる場合、高流動の熱可塑

性樹脂を用い、これを希釈するニート樹脂として高流動のポリプロピレンを用いると、生産性が向上する上に充填剤の分散が良好となり、耐衝撃材料における衝撃強度の低下を起すこともなく好ましい。さらにこの場合、メルトインデックス（MI）の高いポリプロピレンを用いると、有機過酸化物の使用量が少なくすむので、コストダウンとなり好ましい。

ここで、MIは、JIS K 7210に準拠し、荷重21.2 N、温度230℃で測定した値であり、20 g / 10分以上が好ましく、40 g / 10分以上がより好ましく、60 g / 10分以上がさらに好ましい。

発明2においては、これらの熱可塑性樹脂と天然ゴム、合成ゴムあるいは熱可塑性エラストマーをブレンドして用いてもよい。合成ゴムとしては、発明1で例示したものと同様のものが挙げられる。熱可塑性エラストマーとしては、オレフィン系熱可塑性エラストマーやスチレン系熱可塑性エラストマー等各種のものを用いることができる。発明2において、熱可塑性樹脂としてポリプロピレンを用い、これにポリエチレンやゴムを混合して用いることが好ましい。この場合ポリプロピレンの含有割合は、40質量%以上とすることが好ましい。ポリプロピレンの使用量が40質量%未満では、高流動化が困難となり、発明2の熱可塑性樹脂組成物をマスターバッチとして用い、これをニート樹脂で希釈して成形する際に、充填剤の分散性が低下するおそれがある。

充填剤としては、有機充填剤及び無機充填剤のいずれも用いることができ、発明1で例示したものと同様のものが挙げられる。発明2においては無機充填剤が好ましく、無機充填剤の中でもタルクが好ましいが、発明1と同様のタルク以外の充填剤を圧縮して用いる

こともできる。

圧縮される前の充填剤の平均粒径、圧縮された充填剤の嵩比重、圧縮された充填剤の形状、圧縮充填剤の製造法についても発明 1 と同様であり、発明 1 において述べた平均粒径、嵩比重及び形状等を満たす点から、タルクが最も好ましい。

発明 2 においては、熱可塑性樹脂 50 ～ 100 質量部と嵩比重が 0.4 以上の圧縮された充填剤 50 ～ 90 質量部とを合計量で 100 質量部使用する。充填剤の使用量は、55 ～ 85 質量部が好ましい。充填剤の使用量が 50 質量部未満であると、発明 2 の熱可塑性組成物を、製品のコストダウンを目的としてマスターバッチとして使用したときのコスト低減効果が小さい。また、充填剤の使用量が 90 質量部を超えると、発明 2 の熱可塑性組成物をマスターバッチとして使用し、成形時にニート樹脂で希釈したときに充填剤の分散性が低下するため、物性が低下することがある。

有機過酸化物としては、芳香族有機過酸化物や脂肪族有機過酸化物が挙げられ、これらは常温で固体（粉状、粒状）であっても液状のものであってもよい。例えば 1, 3-ビス-(*t*-ブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン、ベンゾイルパーオキシaid、*t*-ブチルパーベンゾエート、*t*-ブチルパーアセテート、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ-(*t*-ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ-(*t*-ベンゾイルパーオキシ)ヘキシ-3、*t*-ブチル-ジパーアジペート、*t*-ブチルパーオキシ-3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート、メチル-エチルケトンパーオキシaid、シクロヘキサノンパーオキシaid、ジ-*t*-ブチルパーオキシaid、ジクミルパーオキシaid、2, 5-ジメチル-2, 5-

ジ- (t-ブチルパーオキシ) ヘキサン、2, 5-ジ-メチル-2, 5-ジ- (t-ブチルパーオキシ) ヘキシン-3、t-ブチルクミルパーオキサイド、1, 1-ビス- (t-ブチルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、1, 1-ビス- (t-ブチルパーオキシ) シクロヘキサン、2, 2-ビス- (t-ブチルパーオキシ) ブタン、p-メンタンヒドロパーオキサイド、ジ-イソプロピルベンゼンヒドロパーオキサイド、キュメンヒドロパーオキサイド、t-ブチルヒドロパーオキサイド、p-サイメンヒドロパーオキサイド、1, 1, 3, 3-テトラ-メチルブチルヒドロパーオキサイドおよび2, 5-ジ-メチル-2, 6-ジ- (ヒドロパーオキシ) ヘキサンが挙げられる。

発明2において、有機過酸化物は樹脂組成物を溶融混練する条件により適宜選択すればよい。溶融混練は、通常160℃以上の温度で行う。有機過酸化物の添加量は、上記熱可塑性樹脂と充填剤の合計100質量部に対して0.008~0.2質量部、好ましくは0.01~0.1である。0.008質量部より少ないと、高濃度領域又は粒径の小さい充填剤を用いた場合に熱可塑性組成物の生産性が安定せず、また、熱可塑性組成物をニート樹脂希釈して成形する際に、充填剤の分散性が得られない。0.2質量部を超えても特に効果が向上するものでもなく、コストアップにつながる。

有機過酸化物は、炭酸カルシウム粉末にまぶして使用することが、品質安定性及び安全性の点から好ましい。この場合、有機過酸化物と炭酸カルシウムの合計量に対する有機過酸化物の量を40質量%とすると、有機過酸化物をまぶした炭酸カルシウムの添加量は、上記熱可塑性樹脂と充填剤の合計100質量部に対して0.02~0.5質量部、好ましくは0.025~0.25質量部とすることができる。

発明 2 に係る組成物には、酸化防止剤、耐候剤、帯電防止剤、顔料等を、熱可塑性樹脂組成物の使用目的に応じて適宜添加することができる。

発明 2 の製造方法においては、混練押出機として単軸混練押出機、二軸混練押出機又は二軸混練部と単軸押出部を有する混練押出機を用いることができる。混練押出しは、熱可塑性樹脂と有機過酸化物とを混練押出機に投入して混練し、次いで充填剤を混練押出機に投入することにより行なわれることが好ましい。発明 2 においては、発明 1 と同様に、二軸部の L/D （長さ／径）が 1.2 以上であるスクリューを備え、かつ二軸部端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機を用いることが好ましい。以下、混練押出機については、発明 1 における説明と同様につき、その説明を省略する。

なお、従来、マスターバッチの製造方法としては、ゲレーション法やバンバリー混練法が用いられており、有機過酸化物を含むマスターバッチを作製する場合、有機過酸化物は、ゲレーション法では、ゲル化後の造粒過程で添加することが可能であるが、原料が既に高濃度化されているため、有機過酸化物による樹脂の分解が促進されず、本発明の効果を得ることができず、またバンバリー混練法は、混練が、樹脂の融点近傍で行なわれるため、ゲレーション法と同様に樹脂分解が促進されないため、所望の効果を得ることができない。

発明 2 の熱可塑性樹脂組成物は、上記のような製造方法により得られるものである。発明 2 の製造方法により得られる組成物のうち、熱可塑性樹脂がポリプロピレンであって充填剤がタルクであるものは、高性能であることを要求される自動車内外装部材を形成するための組成物として好適なものである。また、発明 2 の製造方法によ

り得られた熱可塑性樹脂組成物は、充填剤が高濃度に充填されたものであるのでマスターバッチとして使用することができ、このマスターバッチは、タルクが高濃度に充填されたマスターバッチを必要とする自動車内外装部材や家電品の材料として有用なものである。自動車内外装部材として具体的にはインストルメントパネル、ドアトリム、コンソールボックス、シートバックトレイ、側面衝突防護部材、バンパー、ガーニッシュが挙げられ、特にインストルメントパネル、ドアトリム、バンパーとして好適である。また、発明 2 の樹脂組成物は、上記自動車内外装部材以外にも電気製品のハウジング類、家具、日用品雑貨等にも使用することができる。自動車内装部材に用いるときは、シボ面を形成することが好ましい。

発明 2 の熱可塑性樹脂組成物をマスターバッチとして使用する場合、射出成形等の成形時に、ニート樹脂とドライブレンドしてマスターバッチを希釈し、成形される。ここで、ニート樹脂とは、マスターバッチを形成する樹脂と同様の樹脂を主成分とする樹脂をいい、他の樹脂が混合されていてもよい。この場合、成形機にミキシングノズルを設置しなくても、発明 2 の製造方法により得られるマスターバッチは、物性が低下することがない。但し、顔料のマスターバッチ等を用いて成形時に着色する場合は、顔料の分散ムラが発生しやすいため、ミキシングノズルを設置する方が好ましい。

発明 3 において、マスターバッチに用いる熱可塑性樹脂及びゴムとしては、発明 1 において例示したものと同様のものが挙げられる。

充填剤としては、発明 1 で例示したものと同様のものが挙げられる。発明 3 においては無機充填剤が好ましく、無機充填剤の中でもタルクが好ましいが、発明 1 と同様のタルク以外の充填剤を圧縮して用いることもできる。

圧縮される前の充填剤の平均粒径、圧縮された充填剤の嵩比重、圧縮された充填剤の形状、圧縮充填剤の製造法についても発明 1 と同様であり、発明 1 において述べた平均粒径、嵩比重及び形状等を満たす点から、タルクが最も好ましい。

充填剤の充填量（マスターバッチにおける含有量）は、マスターバッチ中 20 質量％以上が好ましく、より好ましくは 40～90 質量％、特に好ましくは 50～80 質量％である。充填剤の充填量が 20 質量％未満では混練コストの低減によるコストダウン効果を十分に得ることができないおそれがある。

発明 3 の熱可塑性樹脂組成物の製造方法（I）は、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を溶融混練させてなるマスターバッチ二種以上（マスターバッチのうち少なくとも一種は、充填剤として、圧縮された充填剤を用いる。）と、一種又は二種以上のニート樹脂とをドライブレンドする方法である。また、発明 3 の熱可塑性樹脂組成物の製造方法（II）は、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと、圧縮された充填剤を溶融混練させてなるマスターバッチと、二種以上のニート樹脂とをドライブレンドする方法である。このような発明 3 の製造方法は、代表的なマスターバッチを準備しておけば、所望の組成に調製することが可能であるという利点を有するものであり、混練工程を経ることなく安価な組成物を供給することができるものである。ここで、ニート樹脂とは、マスターバッチを形成する樹脂と同様の樹脂を主成分とする樹脂をいい、他の樹脂が混合されていてもよい。

マスターバッチとしては、汎用性の点から、樹脂又ゴム一種と充填剤一種とからなる二元系のものが好ましい。発明 3 の組成物は、上記ドライブレンドにより、目的とする組成物の組成となるように

調製されるが、目的とする組成物と同一の組成に調製できない場合は、実用性が問題にならない範囲で、ニート樹脂の組成を変更することにより対応することができる。また、発明 3 に係るマスターバッチは、自然色仕様が前提となるため、ニート樹脂とのドライブレンド時に、顔料を配合する。顔料としては、分散性に優れる顔料マスターバッチが好ましい。

ドライブレンドにより得られるいずれの組成物も射出成形、押出成形、ブロー成形等により成形することができる。射出成形の場合、成形機にミキシングノズルを設置しなくても、物性が低下することはない。但し、顔料のマスターバッチ等を用いて成形時に着色する場合は、顔料の分散ムラが発生しやすいため、ミキシングノズルを設置する方が好ましい。また、成形機には、各原料を定量フィーダーを介して供給してもよい。

発明 3 に係る組成物には、有機過酸化物、酸化防止剤、耐候剤、帯電防止剤、顔料等を、組成物の使用目的に応じて適宜添加することができる。これらの添加剤は、マスターバッチに仕込むことが好ましい。

以下の説明は主として熱可塑性樹脂についてのものであるが、ゴムの場合も同様である。発明 3 に係る特定のマスターバッチは、特定の混練押出機として、二軸部の L/D （長さ／径）が 12 以上であるスクリュウを備え、かつ二軸部端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機を用いて製造することが好ましい。以下、混練押出機については、発明 1 における説明と同様につき、その説明を省略する。

発明 3 の製造方法により得られる組成物のうち、ニート樹脂がポリプロピレンであって充填剤がタルクであるものは、高性能である

ことを要求される自動車内外装部材を形成するための組成物として好適なものである。また、発明 3 に係るマスターバッチは、タルクが高濃度に充填されたマスターバッチを必要とする自動車内外装部材や家電品の材料として有用なものである。なお、現行のマスターバッチは、ゲレーション法により製造されるものであり、配合の自由度がない。具体的には、ゲル化時における造粒の可否は、配合組成に制約を受け、また、ゴム系のマスターバッチの製造は困難である。これに対し、発明 3 に係るマスターバッチは、配合の制約を受けることがなく、目的に応じて所望の配合とすることができる。

発明 3 の製造方法は、上記マスターバッチを用いることにより、混練工程が不要となるので、混練コストを削減することができ、また、マスターバッチのみを管理すればよいので、色に関しては自然色のみの管理となるため、マスターバッチの種類も集約できるという利点を有する。また、素原料さえ揃えば、直ちに物性や成形性を確認することができ、所望の組成に調製することができるため、製造中に改良の必要が生じた場合に、その場で確認し、組成を変更することができる。さらに、原料コストに余裕ができるため、マスターバッチを高性能品（例えば、高純度タルク、微細タルク、高結晶ポリプロピレンを含有する。）に集約することができる。従って、物性レベルの高い原料に一本化することができるという利点がある。

発明 4 において、（A）成分又は（B）成分における熱可塑性樹脂としては、発明 1 において例示したものと同様のものが挙げられる。発明 4 においてはポリオレフィン系樹脂が好ましく、その中でもポリエチレン及びポリプロピレンが好ましい。（A）成分において熱可塑性樹脂を二種用いる場合、その二種は、同種の樹脂でグレードが異なるものであってもよい。（B）成分の場合も同様であ

る。(A)成分又は(B)成分におけるゴムとしては、発明1において例示したものと同様のものが挙げられる。

上記(A)のマスターバッチにおいて、充填剤としては、有機充填剤及び無機充填剤のいずれも用いることができ、発明1で例示したものと同様のものが挙げられる。発明4においては無機充填剤が好ましく、無機充填剤の中でもタルクが好ましいが、発明1と同様のタルク以外の充填剤を圧縮して用いることもできる。

圧縮される前の充填剤の平均粒径、圧縮された充填剤の嵩比重、圧縮された充填剤の形状、圧縮充填剤の製造法についても発明1と同様であり、発明1において述べた平均粒径、嵩比重及び形状等を満たす点から、タルクが最も好ましい。

(A) マスターバッチにおいては、熱可塑性樹脂及びゴムから選ばれる二種以上80～10質量部と充填剤20～90質量部とを合計量で100質量部使用する。充填剤の使用量が20質量部未満であると、コスト低減効果が小さい。また、充填剤の使用量が90質量部を超えると、マスターバッチを(B)成分で希釈したときに充填剤の分散性が低下するため、物性が低下することがある。

発明4の製造方法において、(A)成分と(B)成分の使用割合は、(A)成分の質量をA、(B)成分の質量をBとしたときに、 $A/(A+B)$ が0.1～0.6であることを要する。 $A/(A+B)$ は好ましくは0.15～0.5である。 $A/(A+B)$ が0.1未満では成形品の品質安定性が低下し、0.6を超えるとコスト低減効果が小さい。

発明4に係る成形品用材料には、有機過酸化物、酸化防止剤、耐候剤、帯電防止剤、顔料等を、組成物の使用目的に応じて適宜添加することができる。これらの添加剤は、マスターバッチに仕込むこと

が好ましい。

発明 4 で用いるマスターバッチは、特定の混練押出機として、二軸部の L/D （長さ／径）が 12 以上であるスクリーを備え、かつ二軸部端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機を用いて製造することが好ましい。以下、混練押出機については、発明 1 における説明と同様につき、その説明を省略する。

発明 4 で用いるマスターバッチとしては、上記のような製造方法により得られるものが好ましい。上記製造方法により得られるマスターバッチのうち、熱可塑性樹脂がポリプロピレンであって充填剤がタルクであるものは、高性能であることを要求される自動車内外装部材を形成するためのマスターバッチとして好適なものである。一般に、マスターバッチは、射出成形等の成形時に、ニート樹脂とドライブレンドしてを希釈し、成形される。ここで、ニート樹脂とは、マスターバッチを形成する樹脂と同様の樹脂を主成分とする樹脂をいい、他の樹脂が混合されていてもよい。発明 4 においては、上記（B）成分をいう。この場合、成形機にミキシングノズルを設置しなくても、上記製造方法により得られるマスターバッチは、物性が低下することがない。但し、顔料のマスターバッチ等を用いて成形時に着色する場合は、顔料の分散ムラが発生しやすいため、ミキシングノズルを設置する方が好ましい。また、（B）成分として二種以上を用いる場合、（B）成分の供給は、その数に応じた定量フィードを介して供給することが好ましい。

発明 4 の成形品は、上記（A）成分、（B）成分、及び必要に応じて用いられる上記添加剤を混合し、射出成形、押出し成形及びブロー成形などの成形法により製造することができる。押出し成形と

しては、異形押出成形が好ましい。発明 4 の成形品は、シート形状等の任意の形状とすることができる。発明 4 の成形品としては、自動車内外装部材として具体的にはインストルメントパネル（インパネ）、耐傷付トリム、ドアトリム、コンソールボックス、シートバックトレー、側面衝突防護部材、バンパー、ガーニッシュが挙げられ、特にインストルメントパネル、耐傷付トリム、バンパーとして好適である。

従来、インパネを製造する場合、その材料にゴムを後添加していたが、発明 4 によれば、マスターバッチにゴムを仕込むことができるので、既存のポリプロピレン（PP）をニート樹脂として用いることができ、このためコストを低減させることができる。また、発明 4 によれば、バンパー用材料として好適な、PP 二種（ブロック PP 二種）／ゴム二種／タルクからなる材料、耐傷付トリム用材料として好適な、PP 二種（ブロック PP、ホモ PP）／HDPE／タルクからなる材料を得ることもできる。

また、発明 4 の成形品は、上記自動車内外装部材以外にも電気製品のハウジング類、家具、日用品雑貨等としても好適に使用することができる。

以下に、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例により何ら制限されるものではない。

実施例 1 及び比較例 1 ～ 3 （PP 73／ゴム 4／タルク 23 質量％含有組成物）

熱可塑性樹脂組成物の配合は、ポリプロピレン（出光石油化学社製，J-762HP）73 質量％、エチレン-オクテン・1 共重合ゴム〔デュポン・ダウエラストマー社製，EG8842〕4 質量％及びタルク（富士タルク社製，TP-A25）23 質量％とした。

タルクとしては、そのままの非圧縮タルク（嵩比重0.14）又はローコンパクタ（栗本工業社製，MRCP）により圧縮して嵩比重を0.70とした粒子状タルク（表1においては「0.70タルク」と記す、以下同様）を用いた。なお、嵩比重は、タルクを容積560 cm³の計量カップに充填するまで注ぎ、軽くタッピングした後、カップの容積に相当するタルクの重量を測定することにより求めた。

上記成分を、二軸混練部と単軸押出部とが一体構造となっている混練押出機（シーティーイー社製，HTM型2軸連続混練押出機，D=50 mm，L/D=22、以下HTMと記す場合もある。）又は単軸押出機（中谷機械社製，NVC，D=50 mm、以下NVCと記す場合もある。）により混練し、押出してペレットを製造した。HTMによる混練押出しは、混練温度220℃、スクリュースクリュー回転数300 rpmで行い、NVCによる混練押出しは、混練温度220℃、スクリュースクリュー回転数100 rpmで行った。混練時に、ペレットを3分間採取し、この重量を測定し、1時間当たりの採取量に換算した重量を吐出量とした。

なお、上記HTM型2軸連続混練押出機において、スクリュースクリューは非噛合い異方向型のものであり、スクリュースクリューのネジ構造は2条ネジであり、二軸混練部の端部には、前記のようなせき止め構造と、樹脂流量を調節するオリフィス調整機能を有している。このせき止め構造とオリフィス調整機能により、熱可塑性樹脂組成物の吐出量を調節した。実施例1では、オリフィス開度を100%とした。また、上記NVCのスクリュースクリューはダルメージ型である。

得られたペレットを、射出成形機（日精樹脂工業社製，FE120）により、成形温度220℃、金型温度50℃の条件で成形してサンプルを作製し、以下の方法により物性を評価した。結果を第1

表に示す。第 1 表に示すように、実施例 1 では、曲げ弾性率及び吐出量が共に高い値を示したが、比較例では曲げ弾性率及び吐出量が、実施例 1 よりも低下した。

(物性評価)

(1) メルトインデックス (MI)

ペレットを用い、J I S K 7 2 1 0 に準拠し、2 3 0 °C、荷重 2 1. 2 N で測定した。

(2) 曲げ弾性率

J I S K 7 1 7 1 に準拠し、曲げ速度 5 m m / 分、スパン 1 0 0 m m で測定した。

(3) I Z O D 衝撃強度

J I S K 7 1 7 1 に準拠して測定した。

(4) 白色度

J I S K 7 1 0 5 に準拠して測定した。

第 1 表

試験項目	単位	実施例 1	比較例 1	比較例 2	比較例 3
		HTM		NVC	
		0. 7 0 外	非圧縮外	0. 7 0 外	非圧縮外
MI	g / 1 0 分	1 2	1 2	1 2	1 2
曲げ弾性率	M P a	2 9 1 0	2 8 2 0	2 5 8 0	2 5 3 0
I Z O D	k J / m ²	5 3	5 4	5 5	5 4
吐出量	k g / h r	2 5 0	2 0 0	6 0	3 5

実施例 2 及び比較例 4 (P P 4 0 / タルク 6 0 質量 % 含有組成物)

熱可塑性樹脂組成物の配合は、ポリプロピレン (出光石油化学社

製、J-784HP) 40質量%及び上記と同様に圧縮して嵩比重を0.70とした粒子状タルク60質量%とした。これらの成分を、上記HTM又は二軸押出部のスクリーが同方向噛合い型の混練押出機(池貝鉄工社製、PCM、D=45mm、L/D=32、せき止め構造なし、以下PCMと記す場合がある。)を用いて混練し、押出してペレットを製造した。PCMによる混練押出しは、混練温度230℃、スクリー回転数150rpmで行った。なお、PCMは、混練部と押出部が同一の2軸で構成されたものである。以下、実施例1と同様にしてサンプルを作製し、物性を評価した。結果を第2表に示す。第2表に示すように、PCMでは曲げ弾性率が低下した。

第2表

試験項目	単位	実施例2	比較例4
		HTM	PCM
		0.70g/cc	0.70g/cc
曲げ弾性率	MPa	9400	8900
IZOD	kJ/m ²	2.6	2.6

実施例3及び比較例5(タルク60質量%含有組成物の希釈品)

実施例2及び比較例4でそれぞれ得られたタルク60質量%含有組成物をマスターバッチとし、ポリプロピレン(出光石油化学社製、J-784HP)50質量%及びこのマスターバッチ50質量%をドライブレンドし、実施例1で用いた射出成形機(但し、ミキシングノズルなし)で成形してサンプルを作製し、上記の方法により物性を評価した。結果を第3表に示す。

第 3 表

試験項目	単位	実施例 3	比較例 5
		HTM	PCM
		0.70 外	0.70 外
MI	g/10分	15	14
曲げ弾性率	MPa	4690	4280
IZOD	kJ/m ²	5.9	5.8

実施例 4, 5 及び比較例 6 ~ 8 (PP 30 / タルク 70 質量% 含有組成物)

熱可塑性樹脂組成物の配合は、ポリプロピレン (出光石油化学社製, J-784HP) 30 質量%、及び非圧縮タルク (嵩比重 = 0.14)、上記と同様に圧縮して嵩比重を 0.70 とした粒子状タルク又は嵩比重を 0.98 とした粒子状タルク 70 質量%とした。これらの成分を、上記 HTM、PCM 若しくはタンデムタイプの混練押出機 (コスモテック社製, CCM, D = 130 mm, L/D = 6, せき止め構造あり、以下 CCM と記す場合がある。) により混練し、押出した。HTM による混練押出しは、混練温度 220℃、スクリー回転数 300 rpm で行い、PCM による混練押出しは、混練温度 230℃、スクリー回転数 150 rpm で行い、CCM による混練押出しは、混練温度 240℃、スクリー回転数 300 rpm で行った。HTM ではペレットが得られたが、PCM 及び CCM ではペレットを製造することができなかった。

ゲレーション法として、ヘンシェルミキサーを用い、180℃で配合成分をゲル化させ、これを冷却槽に移し、造粒機にてペレット

得た。このペレット及び上記で得られたペレットを用いて実施例 1 と同様にしてサンプルを作製し、物性を評価した。結果を第 4 表に示す。第 4 表に示すように、ゲレーション法では曲げ弾性率及び白色度が共に、H T Mを用いた場合よりも低下した。

第 4 表

試験項目	単位	実施例 4	実施例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8
		H T M		P C M	C C M	ゲレーション
		0.70g/枚	0.98g/枚	0.70g/枚	0.70g/枚	非圧縮g/枚
曲げ弾性率	M P a	11300	11260	製造不可	製造不可	9300
I Z O D	k J / m ²	1.8	1.9			1.9
白色度	—	80	80			66
吐出量	k g / h r	140	150			—

実施例 6, 7 及び比較例 9 (タルク 70 質量%含有組成物の希釈品)

上記で得られたタルク 70 質量%含有組成物をマスターバッチとし、ポリプロピレン(出光石油化学社製, J-784HP) 57 質量%及びこのマスターバッチ 43 質量%をドライブレンドし、実施例 1 で用いた射出成形機(但し、ミキシングノズルなし)で成形してサンプルを作製し、上記の方法により物性を評価した。結果を第 5 表に示す。

第 5 表

試験項目	単位	実施例 6	実施例 7	比較例 9
		HTM		グリーン
		0.70 外	0.98 外	非圧縮外
MI	g/10分	15	15	12
曲げ弾性率	MPa	4560	4530	4320
I ZOD	kJ/m ²	6.1	5.6	5.5
白色度	—	80	80	69

実施例 8 及び比較例 10（タルク 80 質量％含有組成物）

熱可塑性樹脂組成物の配合は、ポリプロピレン（出光石油化学社製，J-6071HP）20 質量％及び上記と同様に圧縮して嵩比重を 0.70 とした粒子状タルク 80 質量％とした。これらの成分を、上記 HTM を用いて混練したところ、造粒不可であった。嵩比重 0.70 の粒子状タルクの代わりに嵩比重 0.98 の粒子状タルクを用いたところ、造粒することができた（実施例 8）。一方、嵩比重 0.70 の粒子状タルクの代わりに非圧縮タルクを用いたところ、上記 HTM では造粒不可であった（比較例 10）。なお、造粒不可とは、樹脂が熔融せず、充填剤が押出機先端のダイスから噴出したことを意味する。

実施例 9 及び比較例 11（ゴム 30／タルク 70 質量％含有組成物）

エチレン-オクテン・1 共重合ゴム（デュポン・ダウエラストマー社製，EG8842）30 質量％及び上記と同様にして嵩比重を 0.70 に圧縮した粒子状タルク 70 質量％を上記 HTM を用いて混練し、押出してゴム組成物（ゴムマスターバッチ）を得た。

次に、ポリプロピレン（出光石油化学社製，J-784HP）

70質量%及び上記で得られたゴムマスターバッチ30質量%をドライブレンドし、実施例1で用いた射出成形機（但し、ミキシングノズルなし）で成形してサンプルを作製し（希釈品）、上記の方法により物性を評価した。また、ポリプロピレン（出光石油化学社製、J-784HP）70質量%、エチレン-オクテン・1共重合ゴム（デュポン・ダウエラストマー社製、EG8842）9質量%及び上記と同様の非圧縮タルク（嵩比重=0.14）21質量%をNVCにより混練し、押出し、ペレットにしたものを上記と同じ条件で射出成形してサンプルを作製し、上記の方法により物性を評価した。結果を第6表に示す。第6表から、発明1の方法により製造されたゴムマスターバッチを用いて製造されたゴム成形品は、ゴムマスターバッチを用いない従来の方法により製造されたゴム成形品と同等の物性を有するものであることがわかる。

第 6 表

試験項目	単位	実施例9	比較例11
		希釈品	全配合
MI	g/10分	9	9
曲げ弾性率	MPa	2890	2870
I ZOD	kJ/m ²	41	43

実施例10及び比較例12（PP73／ゴム4／タルク23質量%含有組成物）

熱可塑性樹脂組成物の配合は、実施例1と同様に、ポリプロピレン（出光石油化学社製、J-762HP）73質量%、エチレン-オクテン・1共重合ゴム（デュポン・ダウエラストマー社製、EG

8842〕4質量％及びタルク（富士タルク社製、TP-A25）23質量％とした。タルクとしては、実施例1で用いたローラコンパクタにより圧縮した後、後工程のグラニューターにて得た、長径が約7mmで、嵩比重0.78のチップ状タルクを用いた。実施例1と同様にして、またはCCMによりペレットを製造した。CCMによる混練押出しは、混練温度240℃、スクリー回転数300rpmで行った。これらのペレットを用いて実施例1と同様にしてサンプルを作製し、物性を評価した。その結果を、圧縮タルクを用いた実施例1の結果と共に第7表に示す。

HTMを用いた場合は、圧縮タルクの形状（粒子状、チップ状）によらずほぼ同等の物性を示した。一方、CCMを用いた場合は、曲げ弾性率及びIZOD衝撃強度が低下し、チップ状タルクの影響が現れていることがわかる。サンプルの表面にはタルクの凝集が原因となる外観不良は見られず、外観は良好であった。

第 7 表

試験項目	単位	実施例1	実施例10	比較例12
		HTM		CCM
		0.70g/分	0.78g/分	0.78g/分
		粒子状	チップ状	チップ状
MI	g/10分	12	12	14
曲げ弾性率	MPa	2910	2900	2620
IZOD	kJ/m ²	53	45	30

実施例11～15及び比較例13～17

熱可塑性樹脂として、ブロックポリプロピレン（出光石油化学社製，J-3053HP，MI：30g／10分）又はブロックポリプロピレン（出光石油化学社製，J-6071HP，MI：70g／10分）を用いた。メルトインデックス（MI）の測定法については後述する。充填剤としては、平均粒径が4.5 μ mのタルク（富士タルク社製，TP-A25，嵩比重0.14）を、ローラコンパクタ（栗本工業社製，MRCP）により圧縮して嵩比重を0.35，0.70又は1.0とした粒子状タルク（第8表においては「0.35タルク」等と記す）を用いた。なお、嵩比重は、タルクを容積560 cm^3 の計量カップに充填するまで注ぎ、軽くタッピングした後、カップの容積に相当するタルクの重量を測定することにより求めた。分散剤としてステアリン酸マグネシウム（第8表においては「Mg-S t」と記す、以下同様）、酸化防止剤としてフェノール系酸化防止剤（チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製，イルガノックス1010）（第8表においては「I r g-1010」と記す、以下同様）を用いた。有機過酸化物として1，3-ビス-（*t*-ブチルパーオキシイソプロピル）ベンゼン40質量部を炭酸カルシウム60質量部にまぶしたもの（化薬アクゾ社製，P-14-40C）を用いた。

熱可塑性樹脂と有機過酸化物を混合し、これにタルク及び各種添加剤を混合したものを混練押出しに用いた。すなわちこの混合物を、二軸混練部と単軸押出部とが一体構造となっている混練押出機（シーティーイー社製，HTM型2軸連続混練押出機，D=50mm，L/D=22、以下HTMと記す場合もある。）により混練し、押出してペレットを製造した。混練押出しは、混練温度220℃、スクリー回転数300rpmで行った。

なお、上記H T M型2軸連続混練押出機において、スクリューは非噛合い異方向型のものであり、スクリューのネジ構造は2条ネジであり、二軸混練部の端部には、前記のようなせき止め構造と、樹脂流量を調節するオリフィス調整機能を有している。このせき止め構造とオリフィス調整機能により、熱可塑性樹脂組成物の吐出量を調節した。オリフィス開度は100%とした。

また、ゲレーション法として、ヘンシェルミキサーを用い、180℃で配合成分をゲル化させ、これを冷却槽に移し、造粒機にてペレット得た(比較例15)。

得られた組成物のロス率及び生産性を第8表に示す。組成物をカッティング装置に連続供給し、ストランドカットにより組成物をペレット化する場合、組成物をカッティング装置に供給中に組成物が切れると、切れた部分を廃棄し、再び連続供給をやり直さなければならなくなるので、ロスが生じる。通常、混練押出機の運転開始時に混練押出機の掃除のために2%程度のロスがあるので、カッティング装置に何の障害もなく組成物が連続供給された場合、ロス率は2%程度となる。すなわち、実施例11及び13ではカッティング装置に供給する際には、組成物のロスがないことがわかる。比較例13は、有機過酸化物を使用しない以外は実施例11と同様にしてペレットを作製したものであるが、タルクの分散性が低いためにロス率が高いことがわかる。使用したタルクの嵩比重が同じである場合は、有機過酸化物を使用するか否かで組成物のロス率に差が生じる。このことは、実施例13と比較例16、実施例14と比較例17、実施例15と比較例18との対比からも明らかである。ゲレーション法により熱可塑性組成物を製造した比較例15では、ゲル化後の造粒過程で有機過酸化物を添加したが、これをマスターバツ

チとして用いた比較例 20 (第 9 表) からわかるように、流動性 (MI)、曲げ弾性率、IZOD (アイゾット) 衝撃強度が低いものであった。ここで、ストランドカットは、通常の水槽中で冷却した後、ストランドカッターでペレット状の組成物を採取する方法であるが、タルク濃度が高くなると、ストランドが切れ易くなり、ストランドカットが困難となる。そこで、ダイスからの出口にカッターを設け、材料の押出し直後にペレット化するホットカット方式を用いる。本例では 80 質量%のタルク濃度の場合にホットカットを採用した。また、生産性 (kg/hr) は、1 時間当たりに得られるペレット状の組成物の重量により表したものである。

第 8 表 - 1

配合成分 (質量部)	実施例11	比較例13	比較例14	実施例12	比較例15
J-3053HP	40	40	40	40	40
J-6071HP					
0.35タルク			60		
0.70タルク				60	
1.0タルク	60	60			60
Mg-St	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
Irg-1010	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
P-40-40C	0.1	0	0.1	0.1	0.1
組成物のロス率 (%)	2	19	77	5	2
生産性 (kg/hr)	210	200	125	185	—
ペレタイズ法	ストランドカット				

第 8 表 - 2

配合成分 (質量部)	実施例13	比較例16	実施例14	比較例17	実施例15	比較例18
J-3053HP						
J-6071HP	40	40	30	30	20	20
0.35タルク						
0.70タルク						
1.0タルク	60	60	70	70	80	80
Mg-St	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
Irg-1010	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
P-40-40C	0.1	0	0.1	0	0.1	0
組成物のロス率 (%)	2	14	6	38	2	2
生産性 (kg/hr)	220	210	180	165	145	130
ペレタイズ法	ストランドカット				ホットカット	

実施例 16～20、比較例 19～23 及び参考例 1, 2

第 9 表に示す成分をドライブレンドし、射出成形機（日精樹脂工業社製，FE120）により、成形温度 220℃、射出時間 12 秒、背圧 20%、金型温度 50℃、冷却時間 20 秒、ミキシングノズル無しの条件で成形してサンプルを作製し、以下の方法により物性を評価した。結果を第 9 表に示す。

実施例及び比較例は、実施例 11～15 及び比較例 13, 15～18 で得られた熱可塑性組成物をマスターバッチとして用い、これをニート樹脂で希釈して射出成形した。ニート樹脂として、ブロックポリプロピレン（出光石油化学社製，J-6071HP，MI：70 g/10 分）及びエチレン-オクテン・1 共重合ゴム（デュポン・ダウエラストマー社製，EG-8100）を用いた。参考例 1

は、有機過酸化物を含まない以外は実施例 16, 17 と同じ配合成分を、マスターバッチを用いずに全配合して混練し、成形したものであり、参考例 2 は同様に実施例 18 と同じ配合成分を用いたものである。但し、参考例 1 及び 2 では、充填剤は平均粒径が $4.5 \mu\text{m}$ のタルク（富士タルク社製，TP-A25，嵩比重 0.14）を非圧縮のまま用いた。

第 9 表から、実施例 16, 17 の射出成形品は、マスターバッチを用いしないで作製した参考例 1 の射出成形品と同等の物性バランスを有することがわかる。実施例 18 と参考例 2 との対比からも同様のことがわかる。比較例 13, 16～18 で得られた熱可塑性組成物をマスターバッチとして用いて作製した比較例 19, 21～23 の射出成形品は、物性的には実施例の射出成形品と比べてさほど劣るものではないが、第 8 表からわかるように、組成物のロス率が高いものであり、生産性が良いとはいえない。また、比較例 15 で得られた熱可塑性組成物をマスターバッチとして用いて作製した比較例 20 の射出成形品は、特に曲げ弾性率が劣るものであった。

（物性評価）

（1）メルトインデックス（MI）

ペレットを用い、JIS K 7210 に準拠し、 230°C 、荷重 21.2 N で測定した。

（2）曲げ弾性率

JIS K 7171 に準拠し、曲げ速度 5 mm/分 、スパン 100 mm で測定した。

（3）IZOD 衝撃強度

JIS K 7171 に準拠して測定した。

第 9 表 - 1

配合成分 (質量部)		参考例 1	実施例 16	比較例 19	実施例 17	比較例 20
J-6071HP		51.7	51.7	51.7	51.7	51.7
EG-8100		10	10	10	10	10
J-3053HP		15.3				
TP-A25		23.0				
Mg-St		0.2				
Irg-1010		0.1				
実施例 11 のマスターバッチ			38.3			
実施例 12 のマスターバッチ					38.3	
実施例 13 のマスターバッチ						
実施例 14 のマスターバッチ						
実施例 15 のマスターバッチ						
比較例 13 のマスターバッチ				38.3		
比較例 15 のマスターバッチ						38.3
比較例 16 のマスターバッチ						
比較例 17 のマスターバッチ						
比較例 18 のマスターバッチ						
試験項目	単位					
MI	g/10分	34	38	35	38	30
曲げ弾性率	MPa	2550	2610	2600	2580	2480
IZOD	kJ/m ²	23	20	15	21	12

第 9 表 - 2

配合成分 (質量部)		参考例 2	実施例 18	比較例 21	実施例 19	比較例 22	実施例 20	比較例 23
J-6071HP		67	51.7	51.7	57.1	57.1	61.2	61.2
EG-8100		10	10	10	10	10	10	10
J-3053HP								
TP-A25		23.0						
Mg-St		0.2						
Irg-1010		0.1						
実施例 11 のマスターバッチ								
実施例 12 のマスターバッチ								
実施例 13 のマスターバッチ			38.3					
実施例 14 のマスターバッチ					32.9			
実施例 15 のマスターバッチ							28.8	
比較例 13 のマスターバッチ								
比較例 15 のマスターバッチ								
比較例 16 のマスターバッチ				38.3				
比較例 17 のマスターバッチ						32.9		
比較例 18 のマスターバッチ								28.8
試験項目	単位							
MI	g/10分	40	45	41	42	40	40	38
曲げ弾性率	MPa	2680	2700	2680	2720	2650	2750	2640
IZOD	kJ/m ²	14	12	9	18	10	11	8

製造例 1 ~ 12 (マスターバッチの製造)

熱可塑性樹脂として、ポリプロピレン (出光石油化学社製, J-3000GP)、ポリプロピレン (出光石油化学社製, J-784HP) 又はポリエチレン (出光石油化学社製, 210JZ) を用い、ゴムとしてエチレン-オクテン・1 共重合ゴム (デュポン・ダウエラストマー社製, EG8842) を用いた。充填剤としては、平均

粒径が $4.5\ \mu\text{m}$ のタルク（富士タルク社製，TP-A25）を、そのままの非圧縮タルク（嵩比重0.14）又はローラコンパクト（栗本工業社製，MRCP）により圧縮して嵩比重を0.70とした粒子状タルク（第10表においては「0.70タルク」と記す、以下同様）、平均粒径が $0.86\ \mu\text{m}$ の沈降性硫酸バリウム（巴拉イト工業社製，チンバリST）又は平均粒径が $1.43\ \mu\text{m}$ の重質炭酸カルシウム（同和カルファイン社製，クリストンSS）を用いた。なお、嵩比重は、タルクを容積 $560\ \text{cm}^3$ の計量カップに充填するまで注ぎ、軽くタッピングした後、カップの容積に相当するタルクの重量を測定することにより求めた。第10表において充填剤の配合量が括弧付きであるものは、非圧縮充填剤を用いたことを示す。分散剤としてステアリン酸マグネシウム（第10表においては「Mg-St」と記す、以下同様）、酸化防止剤としてフェノール系酸化防止剤（チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製，イルガノックス1010）（第10表においては「Irg-1010」と記す、以下同様）を用いた。

上記成分を、二軸混練部と単軸押出部とが一体構造となっている混練押出機（シーティーイー社製，HTM型2軸連続混練押出機， $D=50\ \text{mm}$ ， $L/D=22$ 、以下HTMと記す場合もある。）により混練し、押出してペレットを製造した（製造例1～6）。混練押出しは、混練温度 $220\ ^\circ\text{C}$ 、スクリー回転数 $300\ \text{rpm}$ で行った。

なお、上記HTM型2軸連続混練押出機において、スクリーは非噛合い異方向型のものであり、スクリーのネジ構造は2条ネジであり、二軸混練部の端部には、前記のようなせき止め構造と、樹脂流量を調節するオリフィス調整機能を有している。このせき止め

構造とオリフィス調整機能により、熱可塑性樹脂組成物の吐出量を調節した。オリフィス開度は100%とした。

また、ゲレーション法として、ヘンシェルミキサーを用い、180℃で配合成分をゲル化させ、これを冷却槽に移し、造粒機にてペレット得た（製造例7～12）。第10表の「製造の可否」において、「○」は製造することができたことを示し、「×」は製造することができなかったことを示す。また、「充填剤の充填量（%）」は、ペレット中の充填剤の割合（質量%）を示す。

第 10 表 - 1

配合成分 (質量部)	製造例 1	製造例 2	製造例 3	製造例 4	製造例 5	製造例 6
	HTM混練機を使用					
J-3000GP	30	20	30			
J-784HP				30		
EG8842					30	
210JZ						30
0.70μm	70			70	70	70
チンパIST		(80)				
クリストSS			(70)			
Mg-St	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
Irg-1010	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
製造の可否	○	○	○	○	○	○
充填剤の充填量 (%)	44	44	44	44	43	45

第 10 表 - 2

配合成分 (質量部)	製造例 7	製造例 8	製造例 9	製造例10	製造例11	製造例12
	ゲレーション					
J-3000GP	3 0	2 0	3 0			
J-784HP				3 0		
EG8842					3 0	
210JZ						3 0
0.70 μ l	(7 0)			(7 0)	(7 0)	(7 0)
チバ/ST		(8 0)				
クリストSS			(7 0)			
Mg-St	0. 5	0. 5	0. 5	0. 5	0. 5	0. 5
Irg-1010	0. 2	0. 2	0. 2	0. 2	0. 2	0. 2
製造の可否	○	○	○	×	×	×
充填剤の充 填量 (%)	4 4	4 4	4 4	—	—	—

実施例 2 1

製造例 1 で得られたマスターバッチ及びニート樹脂としてポリプロピレン（出光石油化学社製，J - 3 0 0 0 G P 及び J - 2 0 0 3 G P）を用いた。第 1 1 表に示す配合割合（マスターバッチは第 1 1 表においては M B と記す、以下同様）でドライブレンドし、射出成形機（日精樹脂工業社製，F E 1 2 0）により、成形温度 2 2 0 °C、射出時間 1 2 秒、背圧 1. 5 M P a、金型温度 5 0 °C、冷却時間 2 0 秒、ミキシングノズル無しの条件で成形してサンプルを作製し、以下の方法により物性を評価した。結果を第 1 1 表に示す。

（物性評価）

(1) メルトインデックス (MI)

ペレットを用い、JIS K 7210に準拠し、230℃、荷重21.2Nで測定した。

(2) 曲げ弾性率

JIS K 7171に準拠し、曲げ速度5mm/分、スパン100mmで測定した。

(3) IZOD衝撃強度

JIS K 7171に準拠して測定した。

比較例24 (通常のブレンド)

実施例21の成形サンプルと原料及びその組成比が同じになるように配合した第11表に示す配合成分により、上記HTM型2軸連続混練押出機を用いてペレットを製造した。このペレットを用い、実施例21と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評価した。結果を第11表に示す。

比較例25

マスターバッチとして、充填剤として非圧縮タルクを用いゲレーション法により製造したマスターバッチ (製造例7) を用い、実施例21の成形サンプルと原料及びその組成比が同じになるように配合し、実施例21と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評価した。結果を第11表に示す。

第11表に示すように、実施例21の組成物は、通常の製造法により得られた比較例24の組成物と同等の物性を有しているが、比較例25の組成物は、ゲレーション法によりマスターバッチを製造したため、充填剤の分散性が劣り、このため物性が劣るものである。

第 11 表

配合成分 (質量部)		実施例21	比較例24	比較例25
製造例1のMB		24.3		
製造例7のMB				24.3
J-3000GP		32.7	40	32.7
J-2003GP		43	43	43
0.70タルク			17	
Mg-St			0.12	
Irg-1010			0.05	
試験項目	単位			
MI	g/10分	23	24	19
曲げ弾性率	MPa	3640	3620	3320
IZOD	kJ/m ²	3.8	3.8	3.1

実施例 2 2

製造例 1 及び製造例 2 で得られたマスターバッチを用い、ニート樹脂としてポリプロピレン (出光石油化学社製, J-903GP) を用い、第 12 表に示す配合割合でドライブレンドした以外は、実施例 21 と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評価した。結果を第 12 表に示す。

比較例 2 6 (通常ブレンド)

実施例 22 の成形サンプルと原料及びその組成比が同じになるように配合した第 3 表に示す配合成分により、上記 HTM 型 2 軸連続混練押出機を用いてペレットを製造した。このペレットを用い、実施例 21 と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評

価した。結果を第 12 表に示す。

比較例 27

充填剤として非圧縮タルクを用い、ゲレーション法により製造したマスターバッチ（製造例 7）及び充填剤としてチンバリ S T を用いゲレーション法により製造したマスターバッチ（製造例 8）を用い、実施例 22 の成形サンプルと原料及びその組成比が同じになるように配合し、実施例 21 と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評価した。結果を第 12 表に示す。

第 12 表

配合成分（質量部）		実施例22	比較例26	比較例27
製造例1のMB		2.9		
製造例2のMB		10		
製造例7のMB				2.9
製造例8のMB				10
J-903GP		87.1	90	87.1
チンバリST			8	
0.70タルク			2	
Mg-St			0.07	
Irg-1010			0.03	
試験項目	単位			
MI	g/10分	16	16	16
曲げ弾性率	MPa	2440	2430	2200
IZOD	kJ/m ²	5.3	5.5	4.4

実施例 2 3

製造例 1 及び製造例 3 で得られたマスターバッチを用い、ニート樹脂としてポリプロピレン（出光石油化学社製，J-2000GP）を用い、第 1 3 表に示す配合割合でドライブレンドした以外は、実施例 2 1 と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評価した。結果を第 1 3 表に示す。

比較例 2 8（通常のブレンド）

実施例 2 3 の成形サンプルと原料及びその組成比が同じになるように配合した第 1 3 表に示す配合成分により、上記 H T M 型 2 軸連続混練押出機を用いてペレットを製造した。このペレットを用い、実施例 2 1 と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評価した。結果を第 1 3 表に示す。

比較例 2 9

充填剤として非圧縮タルクを用い、ゲレーション法により製造したマスターバッチ（製造例 7）及び充填剤としてクリストン S S を用いゲレーション法により製造したマスターバッチ（製造例 9）を用い、実施例 2 3 の成形サンプルと原料及びその組成比が同じになるように配合し、実施例 2 1 と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評価した。結果を第 1 3 表に示す。

第 13 表

配合成分 (質量部)		実施例23	比較例28	比較例29
製造例1のMB		10		
製造例3のMB		20		
製造例7のMB				10
製造例9のMB				20
J-3000GP			21	
J-2000GP		58	58	58
0.70タルク			7	
クリストンSS			14	
Mg-St			0.2	
Irg-1010			0.1	
試験項目	単位			
MI	g/10分	17	18	13
曲げ弾性率	MPa	2970	2950	2610
IZOD	kJ/m ²	4.1	4.1	3.4

実施例 24

製造例4及び製造例5で得られたマスターバッチを用い、ニート樹脂としてポリプロピレン（出光石油化学社製，J-466HP）を用い、第14表に示す配合割合でドライブレンドした以外は、実施例21と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評価した。結果を第14表に示す。

比較例 30（通常のブレンド）

実施例24の成形サンプルと原料及びその組成比が同じになるように配合した第14表に示す配合成分により、上記HTM型2軸連

続混練押出機を用いてペレットを製造した。このペレットを用い、実施例 2 1 と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評価した。結果を第 1 4 表に示す。

第 1 4 表に示すように、実施例 2 4 の組成物は、通常の製造法により得られた比較例 3 0 の組成物と同等の物性を有するものである。

第 1 4 表

配合成分 (質量部)		実施例24	比較例30
製造例 4 の MB		6. 2	
製造例 5 の MB		26. 7	
J - 7 8 4 HP			5 4
J - 4 6 6 HP		1 5	1 5
EG 8 8 4 2			8
TP - A 2 5			2 3
Mg - S t		0. 2	0. 2
I r g - 1 0 1 0			0. 1 7
試験項目	単位		
MI	g / 1 0 分	8	9
曲げ弾性率	MP a	2 7 6 0	2 7 5 0
I Z O D	k J / m ²	5 7	5 3

実施例 2 5

製造例 1 及び製造例 6 で得られたマスターバッチを用い、ニート樹脂としてポリプロピレン（出光石油化学社製，J - 6 0 7 1 HP 及び J - 3 0 0 0 GP）を用い、第 1 5 表に示す配合割合でドライブレンドした以外は、実施例 2 1 と同様にしてサンプルを作製し、

上記方法により物性を評価した。結果を第 15 表に示す。

比較例 31 (通常のブレンド)

実施例 25 の成形サンプルと原料及びその組成比が同じになるように配合した第 15 表に示す配合成分により、上記 H T M 型 2 軸連続混練押出機を用いてペレットを製造した。このペレットを用い、実施例 21 と同様にしてサンプルを作製し、上記方法により物性を評価した。結果を第 15 表に示す。

第 15 表に示すように、実施例 25 の組成物は、通常の製造法により得られた比較例 31 の組成物と同等の物性を有するものである。

第 15 表

配合成分 (質量部)		実施例25	比較例31
製造例1のMB		4.7	
製造例6のMB		16.7	
J-6071HP		65	65
J-3000GP		13.6	15
210JZ			5
TP-A25			15
Mg-St			0.11
試験項目	単位		
MI	g/10分	60	62
曲げ弾性率	MPa	2300	2320
IZOD	kJ/m ²	5.9	5.7

製造例 13 ~ 18 (マスターバッチの製造)

熱可塑性樹脂として、ブロックポリプロピレン (出光石油化学社

製、J-762H)、ブロックポリプロピレン(出光石油化学社製、J-6071HP)、ホモポリプロピレン(出光石油化学社製、J-3000GP)又は高密度ポリエチレン(出光石油化学社製、210JZ)を用い、ゴムとしてエチレン-オクテン・1共重合ゴム(デュポン・ダウエラストマー社製、EG-8100)又はエチレン-プロピレン共重合ゴム(ジェイエスアール社製、EP07-P)を用いた。充填剤としては、平均粒径が $4.5\mu\text{m}$ のタルク(富士タルク社製、TP-A25)を、そのままの非圧縮タルク(嵩比重0.14)又はローラコンパクタ(栗本工業社製、MRCP)により圧縮して嵩比重を1.0とした粒子状タルク(第16表においては「1.0タルク」と記す、以下同様)を用いた。なお、嵩比重は、タルクを容積 560cm^3 の計量カップに充填するまで注ぎ、軽くタッピングした後、カップの容積に相当するタルクの重量を測定することにより求めた。有機過酸化物として1,3-ビス-(*t*-ブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン40質量部を炭酸カルシウム60質量部にまぶしたもの(化薬アクゾ社製、P-14-40C)を用いた。顔料として、ダークグレイドライカラー顔料(東京インキ社製、NH-283L色)又は黒色マスターバッチ顔料(キャボット社製、PE2272、低密度ポリエチレン60質量%/カーボンブラック40質量%)を用いた。なお、これらの顔料の配合量は、それぞれ最終配合の組成に調整した。分散剤としてステアリン酸マグネシウム(第16表においては「Mg-St」と記す、以下同様)、酸化防止剤としてフェノール系酸化防止剤(チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製、イルガノックス1010)(第16表においては「Irg-1010」と記す、以下同様)を用いた。製造例13~15はインパネ用のマスターバッチ、製造例16及び17

はバンパー用のマスターバッチ、製造例 18 は耐傷付トリム用のマスターバッチである。

上記成分を、二軸混練部と単軸押出部とが一体構造となっている混練押出機（シーティーイー社製、H T M 型 2 軸連続混練押出機、 $D = 50 \text{ mm}$ 、 $L/D = 22$ 、以下 H T M と記す場合もある。）により混練し、押出してペレットを製造した（製造例 13, 14, 16 ~ 18）。混練押出しは、混練温度 220°C 、スクリュースクリュー回転数 300 rpm で行った。

なお、上記 H T M 型 2 軸連続混練押出機において、スクリュースクリューは非噛合い異方向型のものであり、スクリュースクリューのネジ構造は 2 条ネジであり、二軸混練部の端部には、前記のようなせき止め構造と、樹脂流量を調節するオリフィス調整機能を有している。このせき止め構造とオリフィス調整機能により、熱可塑性樹脂組成物の吐出量を調節した。オリフィス開度は 100% とした。

また、ゲレーション法として、ヘンシェルミキサーを用い、 180°C で配合成分をゲル化させ、これを冷却槽に移し、造粒機にてペレット得た（製造例 15）。

第 16 表

配合成分 (質量部)	製造例13	製造例14	製造例15	製造例16	製造例17	製造例18
	インパネ			バンパー		耐傷付トリム
	HTM		グレーション	HTM		HTM
PP (J-762HP)	9	9	9			
PP (J-6071HP)				2	2	
PP (J-3000GP)						33.3
HDPE (210JZ)						16.7
ゴム (EG-8100)	21	21	21			
ゴム (EP-07P)				28	28	
圧縮タルク (1.0タルク)	70	70		70	70	50
タルク (TP-A25)			70			
P-14-40C						0.2
ダークグレイカラー顔料(NH-283L色)		4.2				
黒マスターバッチ 顔料 (PE2272)					5.2	2
Mg-St.	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35	0.33
Irg-1010	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35	0.33

実施例 26～28 及び比較例 32～34 (インパネ用成形品)

第 17 表に示す成分をドライブレンドし、射出成形機 (日精樹脂工業社製, FE120) に投入し、成形温度 220℃、射出時間 12 秒、背圧 20% (全配合の場合は 10%)、射出速度 50%、射出圧; 最小充填圧 + 10%、金型温度 50℃、冷却時間 20 秒の条件で成形してサンプルを作製した。なお、定量フィーダーとして、(有) 佐藤産業社製のシンプルカラー (SC-IN-4P (機上タイプ)) を使用した。得られたサンプルについて、以下の方法により物性を評価した。第 17 表に示す。第 17 表において、ドライブレンド成形用ダークグレイ MB (マスターバッチ) 顔料 (NH-

283L色)は、東京インキ社製のものであり、ドライブレンド成形時の分散性を考慮した顔料である。

比較例33及び34は、実施例26と同様の配合であって、マスターバッチを用いないで、全配合品を用いて射出成形を行なったものである。

(物性評価)

(1) メルトインデックス (MI)

表面硬度測定用テストピース (75 mm × 75 mm × 3 mmの平板) を切削し、ASTM D1238に準拠して測定した。

(2) 曲げ弾性率

JIS K 7171に準拠し、曲げ速度5 mm/分、スパン100 mmで測定した。

(3) アイゾット (IZOD) 衝撃強度

JIS K 7171に準拠して測定した。

(4) 色むら発生の有無

75 mm × 75 mm × 3 mmのサンプルについて目視で評価した。

第 17 表

配合成分 (質量部)	実施例26	実施例27	実施例28	比較例32	比較例33	比較例34
					全配合	全配合
PP (J-762HP)	71.4	71.4	71.4	71.4	(74)	(74)
ゴム (EG-8100)					(6)	(6)
タルク (TP-A25)					(20)	(20)
Mg-St					(0.1)	(0.1)
Irg-1010					(0.1)	(0.1)
ドライブレンド 成形用ダークグレーMB顔料	3			3	3	3
製造例13ママスターバッチ	28.6					
製造例14ママスターバッチ		28.6	28.6			
製造例15ママスターバッチ				28.6		
成形機のミキシングノズルの有無	有り	無し	有り	有り	無し	有り
MB / (MB+ニート樹脂)	0.286	0.286	0.286	—	—	—
MBの充填剤濃度 (質量%)	70	70	70	—	—	—
試験項目	単位					
M1	g/10分	12	14	14	9	11
曲げ弾性率	MPa	2410	2490	2470	2200	2380
I ZOD (ノッチ付)	kJ/m ²	55	53	59	31	51
色むら発生の有無	目視	無し	無し	無し	有り	有り
最小充填圧	%	30	20	27	35	22

実施例29～31及び比較例35、36 (バンパー用成形品 (ASTM型))

第18表に示す成分をドライブレンドし、射出成形機 (日精樹脂工業社製, FE120) に投入し、成形温度220℃、射出時間12秒、背圧20% (全配合の場合は10%)、射出速度50%、射出圧; 最小充填圧+10%、金型温度50℃、冷却温度20秒の条件で成形してサンプルを作製した。なお、定量フィーダーとして、

(有) 佐藤産業社製のシンプルカラー (S C - I N - 4 P (機上タイプ)) を使用した。得られたサンプルについて、上記方法により物性を評価した。結果を第 18 表に示す。なお、アイゾット (I Z O D) 衝撃強度は、 -30°C において測定した。第 18 表において、ドライブレンド成形用黒 MB (マスターバッチ) 顔料は、キャボット社製のものであり、ドライブレンド成形時の分散性を考慮した顔料である。

比較例 35 及び 36 は、実施例 29 と同様の配合であって、マスターバッチを用いないで、射出成形を行なったものである。

第 18 表

配合成分 (質量部)		実施例29	実施例30	実施例31	比較例35	比較例36
					全配合	全配合
PP (J-6071HP)		59.4	59.4	59.4	(60)	(60)
ゴム (EG-8100)		12	12	12	(12)	(12)
ゴム (EP-07P)					(8)	(8)
タルク (TP-A25)					(20)	(20)
Mg-St					(0.1)	(0.1)
Irg-1010					(0.1)	(0.1)
ドライブレンド 成形用黒MB顔料		3			3	3
製造例16 ママスターバッチ		28.6				
製造例17 ママスターバッチ			28.6	28.6		
成形機のみキシングノズルの有無		有り	無し	有り	無し	有り
MB / (MB+ニート樹脂)		0.286	0.286	0.286	—	—
MBの充填剤濃度 (質量%)		70	70	70	—	—
試験項目	単位					
MI	g/10分	18	19	19	15	15
曲げ弾性率	MPa	1770	1850	1810	1580	1570
IZOD(-30℃, ノッチ付)	kJ/m ²	22	21	22	20	21
色むら発生の有無	目視	無し	無し	無し	有り	無し
最小充填圧	%	21	15	19	17	23

実施例32, 33及び比較例37, 38 (耐傷付きトリム用成形品 (ASTM型))

第19表に示す成分をドライブレンドし、射出成形機 (日精樹脂工業社製, FE120) に投入し、成形温度220℃、射出時間1.2秒、背圧20% (全配合の場合は10%)、射出速度50%、

射出圧；最小充填圧＋10％、金型温度50℃、冷却時間20秒の条件で成形してサンプルを作製した。なお、定量フィーダーとして、（有）佐藤産業社製のシンプルカラー（SC－IN－4P（機上タイプ））を使用した。得られたサンプルについて、以下の方法により物性を評価した。なお、デュポン衝撃強度は、荷重2kgf（約19.6N）、撃芯1／2インチΦ（12.7mmΦ）、受け皿内径2インチ（50.8mm）の条件で、75mm×75mm×3mmに切削したサンプルを用い、－10℃において測定した。結果を第19表に示す。第19表において、ドライブレンド成形用ダークグレーMB（マスターバッチ）顔料（NH－283L色）は、実施例26で用いたものと同様のものである。

比較例37及び38は、実施例32と同様の配合であって、マスターバッチを用いないで、全配合品を用いて射出成形を行なったものである。

第 19 表

配合成分 (質量部)		実施例32	実施例33	比較例37	比較例38
				全配合	全配合
PP (J-6071HP)		70	70	(70)	(70)
PP (J-3000GP)				(10)	(10)
HDPE (210JZ)				(5)	(5)
タルク (TP-A25)				(15)	(15)
Mg-St				(0.1)	(0.1)
Irg-1010				(0.1)	(0.1)
ドライロッド 成形用ダークグレー-MB顔料				3	3
P-14-40C				(0.06)	(0.06)
製造例18のマスターバッチ		30	30		
成形機のみキシングノズルの有無		無し	有り	無し	有り
MB / (MB+ニート樹脂)		0.30	0.30	—	—
MBの充填剤濃度 (質量%)		50	50	—	—
試験項目	単位				
MI	g / 10分	70	71	71	71
曲げ弾性率	MPa	2380	2360	2280	2250
IZOD (ノッチ付)	kJ / m ²	5.8	6.1	5.9	6.1
デュロメーター衝撃強度(-10℃)	J	6	8	6	8
色むら発生の有無	目視	無し	無し	有り	無し
最小充填量	%	6	11	8	15

産業上の利用可能性

発明 1 及び 2 によれば、物性バランスに優れ、充填剤を高濃度に含有する熱可塑性樹脂組成物を生産性良く製造することができ、この組成物は、マスターバッチとして好適なものである。

発明 3 によれば、マスターバッチを用いない通常の混練により製造した組成物と同等の物性を有する熱可塑性樹脂組成物を得ることができる。

発明 4 によれば、複雑な配合を必要とする成形品の製造にも対応できる成形品用材料を安価に製造することができ、この成形品用材料を成形してなる成形品は、外観性が良好であり、特に自動車内外装部材として好適なものである。

請求の範囲

1. 少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を含む組成物を混練押出機を用いて製造する方法であって、充填剤として、圧縮された充填剤を用い、混練押出機として、二軸部の L/D （長さ／径）が 12 以上であるスクリーを備え、かつ二軸部端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機を用いて、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を熔融混練させることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物又はゴム組成物の製造方法。
2. 二軸混練部のスクリーが、非噛合い異方向型である請求の範囲第 1 項に記載の製造方法。
3. 二軸混練部のスクリーが、そのネジ構造が 2 条ネジである請求の範囲第 1 項に記載の製造方法。
4. 二軸混練部が、その端部に配合成分の流量を調節する機能を有するものである請求の範囲第 1 項に記載の製造方法。
5. 混練押出機が、二軸混練部と単軸押出部とが一体構造のものである請求の範囲第 1 項に記載の製造方法。
6. 充填剤が、圧縮される前の平均粒径が $15\ \mu\text{m}$ 以下のものである請求の範囲第 1 項に記載の製造方法。

7. 充填剤が、加圧処理又は減圧処理により圧縮されたものである請求の範囲第1項に記載の製造方法。

8. 圧縮された充填剤が、その形状が粒子状のものである請求の範囲第1項に記載の製造方法。

9. 充填剤がタルクである請求の範囲第1項に記載の製造方法。

10. 熱可塑性樹脂がポリオレフィン系樹脂である請求の範囲第1項に記載の製造方法。

11. 請求の範囲第1項に記載の方法により製造された熱可塑性樹脂組成物又はゴム組成物。

12. 熱可塑性樹脂50～10質量部と高比重が0.4以上の圧縮された充填剤50～90質量部との合計量100質量部を、有機過酸化物0.008～0.2質量部の存在下で、単軸混練押出機、二軸混練押出機又は二軸混練部と単軸押出部を有する混練押出機を用いて、混練押出しすることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

13. 混練押出しが、熱可塑性樹脂と有機過酸化物とを混練押出機に投入して混練し、次いで充填剤を混練押出機に投入することにより行なわれるものである請求の範囲第12項に記載の製造方法。

14. 二軸混練部と単軸押出部を有する混練押出機が、二軸部のL/D（長さ／径）が12以上であるスクリーを備え、かつ二軸部

端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなるものである請求の範囲第 1 2 項に記載の製造方法。

1 5. 有機過酸化物が、炭酸カルシウムにまぶしてあるものである請求の範囲第 1 2 項に記載の製造方法。

1 6. 圧縮された充填剤が、圧縮される前の平均粒径が $1.5 \mu\text{m}$ 以下のものである請求の範囲第 1 2 項に記載の製造方法。

1 7. 充填剤が、タルクである請求の範囲第 1 2 項に記載の製造方法。

1 8. 熱可塑性樹脂が、ポリオレフィン系樹脂である請求の範囲第 1 2 項に記載の製造方法。

1 9. ポリオレフィン系樹脂が、ホモポリプロピレン、ブロックポリプロピレン又はランダムポリプロピレンである請求の範囲第 1 8 項に記載の製造方法。

2 0. 請求の範囲第 1 2 項に記載の方法により製造された熱可塑性樹脂組成物。

2 1. 少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと、圧縮された充填剤を溶融混練させてなるマスターバッチと、二種以上のニート樹脂とをドライブレンドすることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

22. マスターバッチにおける充填剤の濃度が、20質量%以上である請求の範囲第21項に記載の製造方法。

23. 少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を熔融混練させてなるマスターバッチ二種以上と、一種又は二種以上のニート樹脂とをドライブレンドすることにより熱可塑性樹脂組成物を製造する方法であって、上記マスターバッチのうち少なくとも一種は、充填剤として、圧縮された充填剤を用いることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

24. マスターバッチにおける充填剤の濃度が、20質量%以上である請求の範囲第23項に記載の製造方法。

25. マスターバッチが、混練押出機として、二軸部のL/D（長さ／径）が12以上であるスクリュウを備え、かつ二軸部端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機を用いて、少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を熔融混練させることにより製造されるものである請求の範囲第21項に記載の製造方法。

26. 圧縮された充填剤が、圧縮される前の平均粒径が15 μm 以下のものである請求の範囲第21項に記載の製造方法。

27. 充填剤が、加圧処理又は減圧処理により圧縮されたものである請求の範囲第21項に記載の製造方法。

28. 圧縮された充填剤が、その形状が粒子状のものである請求の範囲第21項に記載の製造方法。

29. 充填剤がタルクである請求の範囲第21項に記載の製造方法。

30. 熱可塑性樹脂がポリオレフィン系樹脂である請求の範囲第21項に記載の製造方法。

31. 請求の範囲第21項に記載の方法により製造された熱可塑性樹脂組成物。

32. (A) 熱可塑性樹脂及びゴムから選ばれる二種以上と、圧縮された充填剤を含有するマスターバッチと、(B) 熱可塑性樹脂及びゴムから選ばれる一種以上とをドライブレンドすることにより成形品用材料を製造する方法であって、(A) 成分の質量をA、(B) 成分の質量をBとしたときに、 $A / (A + B)$ が0.1～0.6であることを特徴とする成形品用材料の製造方法。

33. マスターバッチが、混練押出機として、二軸部のL/D（長さ／径）が1.2以上であるスクリュウを備え、かつ二軸部端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機を用いて、熱可塑性樹脂及びゴムから選ばれる二種以上と充填剤を熔融混練させることにより製造されるものである請求の範囲第32項に記載の製造方法。

▲ 1B

Obvious Error
(09.11.01)

34. (A) 成分又は (B) 成分の熱可塑性樹脂が、ポリエチレン及びポリプロピレン^{▲か}から選ばれるものである請求の範囲第32項に記載の製造方法。

35. マスターバッチにおける圧縮された充填剤の濃度が、20～90質量%である請求の範囲第32項に記載の製造方法。

▲▲ 1B

Obvious Error
(09.11.01)

36. 圧縮された充填剤が、少なくともタルクを含むものである請求の範囲第32項[▲]いづれか[▲]に記載の製造方法。

37. 請求の範囲第32項に記載の製造方法により得られた成形品用材料を成形してなる成形品。

38. 成形が、射出成形、押出し成形又はブロー成形により行なわれるものである請求の範囲第37項に記載の成形品。

図 1

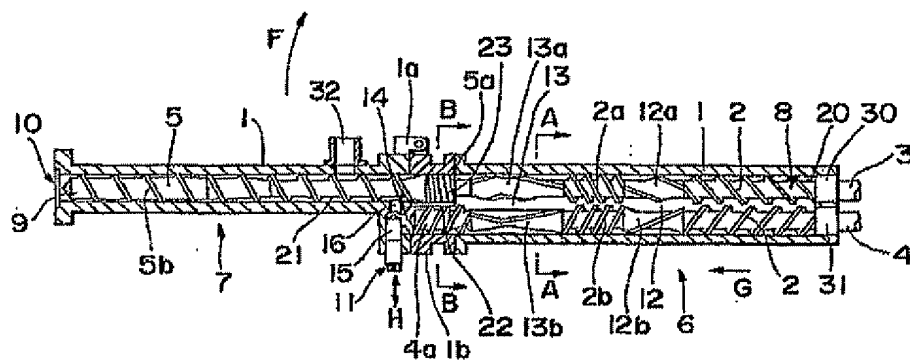


図 2

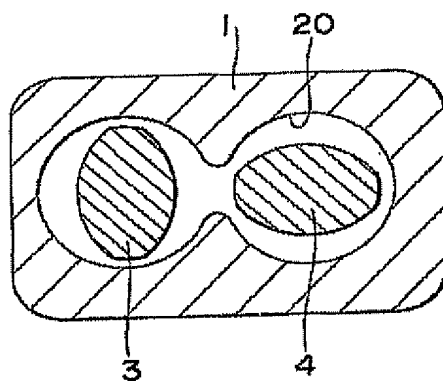
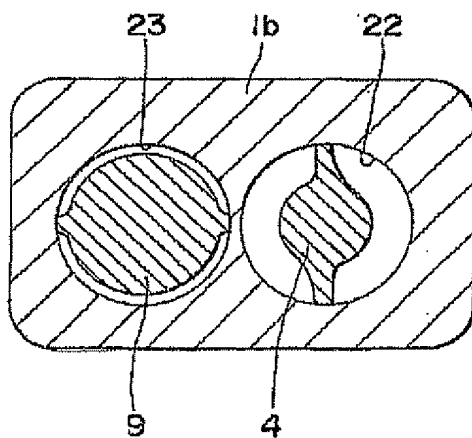


図 3



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/07730

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ B29B7/46, B29B11/16, B29C47/40, B29K105:16
C08L101/00, C08K9/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ B29B7/00-B29B15/14, B29C47/00-B29C47/96,
C08L1/00-C08L101/16, C08K3/00-C08K13/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L (QUESTEL)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 4-306261 A (Mitsui Petrochem. Ind. Ltd.), 29 October, 1992 (29.10.92),	1-11, 21-22, 25, 33
Y	Claims; Par. Nos. [0026], [0032], working examples (Family: none)	12-20
X	JP 8-176339 A (Teijin Limited), 09 July, 1996 (09.07.96),	1-11, 21-22, 25, 33
Y	Claims; Par. No. [0010] (Family: none)	12-20
X	JP 4-63837 A (Nissin Kararing K.K.), 28 February, 1992 (28.02.92),	1-11, 21-22, 25, 33
Y	Claims (Family: none)	12-20
X	JP 11-348149 A (Sumitomo Rubber Ind. Ltd.), 21 December, 1999 (21.12.99),	11
Y	Claims; working examples (Family: none)	1-10, 12-22, 25, 33

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
28 November, 2001 (18.11.01)

Date of mailing of the international search report
11 December, 2001 (11.12.01)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/07730

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 3-135431 A (Kurimoto Ltd.), 10 June, 1991 (10.06.91), Claims (Family: none)	11 1-10, 12-22, 25, 33
X Y	EP 942013 A (Grand Polymer Co., Ltd.), 15 September, 1997 (15.09.97), Par. Nos. [0101]-[0105], & WO 99/07752 A1 & JP 11-511967 A	11, 20 12-19 1-10, 21, 22, 25, 33
X Y	JP 10-306173 A (Sekisui Plastics Co., Ltd.), 17 November, 1998 (17.11.98), Claims; Par. Nos. [0011], [0012] (Family: none)	11, 20 12-19 1-10, 21, 22, 25, 33
X Y	JP 2000-159949 A (Kabushiki Kaisha Grand Polymer), 13 June, 2000 (13.06.00), Claims; Par. Nos. [0066], [0085] (Family: none)	11, 20 12-19 1-10, 21, 22, 25, 33

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/07730

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

See the extra sheet.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☒ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
1-22, 25, 33
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/07730

Continuation of Box No. II of continuation of first sheet (1)

The special technical feature of claim 1 relates to a process for producing a thermoplastic resin composition or rubber composition wherein

"filler compacts are used" and
at least a thermoplastic resin and/or a rubber is melt-kneaded together with the filler

"by means of a kneading extruder comprising a single-screw extruding part and a twin-screw kneading part which is equipped with screws having an L/D in the twin-screw part of 12 or higher and has a dam at an end of the twin-screw part."

Incidentally, a process for producing a thermoplastic resin composition which comprises melt-kneading at least a thermoplastic resin and a filler and in which "filler compacts are used" as the filler is disclosed in publications 1 and 2 shown in the following row C. Consequently, a technique in which "filler compacts are used" by itself does not fall under the category of special technical features.

Publication 1: JP 4-306261 A (Mitsui Petrochemical Industries, Ltd.) 26, Oct. 1992 (29.10.92)
[Claims], [0026], [0032], and [Examples]

Publication 2: JP 8-176339 A (Teijin Chemicals Ltd.)
09, Jul. 1996 (09.07.96)
[Claims] and [0010]

It is not considered that claims 12-24, 26-32, and 34-38 relate to a process for producing a thermoplastic resin composition or rubber composition wherein

"filler compacts are used" and
at least a thermoplastic resin and/or a rubber is melt-kneaded together with the filler

"by means of a kneading extruder comprising a single-screw extruding part and a twin-screw kneading part which is equipped with screws having an L/D in the twin-screw part of 12 or higher and has a dam at an end of the twin-screw part."

These inventions hence have no technical relationship involving one or more identical or corresponding special technical features. Therefore, they are not so linked as to form a single general inventive concept.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl⁷ B29B7/46, B29B11/16, B29C47/40, B29K105:16
C08L101/00, C08K9/00,

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl⁷ B29B7/00-B29B15/14, B29C47/00-B29C47/96,
C08L1/00-C08L101/16, C08K3/00-C08K13/08,

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922年-1996年

日本国公開実用新案公報 1971年-2001年

日本国登録実用新案公報 1994年-2001年

日本国実用新案登録公報 1996年-2001年

国際調査で利用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L (QUESTEL)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 4-306261 A (三井石油化学工業株式会社), 29. Oct. 1992 (29. 10. 92),	1-11, 21-22, 25, 33
Y	[特許請求の範囲], [0026], [0032], [実施例] (ファミリーなし)	12-20
X	JP 8-176339 A (帝人化成株式会社), 09. Jul. 1996 (09. 07. 96),	1-11, 21-22, 25, 33
Y	[特許請求の範囲], [0010] (ファミリーなし)	12-20
X	JP 4-63837 A (日新カラリング株式会社), 28. Feb. 1992 (28. 02. 92),	1-11, 21-22, 25, 33
Y	特許請求の範囲 (ファミリーなし)	12-20

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

28. 11. 01

国際調査報告の発送日

11.12.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

安藤 達也 印

4F 9285

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 11-348149 A (住友ゴム工業株式会社) 21. Dec. 1999 (21. 12. 99), [特許請求の範囲], [実施例] (ファミリーなし)	11 1-10, 12-22 25, 33
X Y	JP 3-135431 A (株式会社栗本鐵工所), 10. Jun. 1991 (10. 06. 91), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	11 1-10, 12-22 25, 33
X Y	EP 942013 A (Grand Polymer Co., Ltd.), 15. Sep. 1997 (15. 09. 97), [0101] - [0105] &WO 99/07752 A1 .&JP 11-511967 A	11, 20 12-19 1-10, 21-22, 25, 33
X Y	JP10-306173 A (積水化成工業株式会社), 17. Nov. 1998 (17. 11. 98), [特許請求の範囲], [0011], [0012] (ファミリーなし)	11, 20 12-19 1-10, 21-22, 25, 33
X Y	JP 2000-159949 A (株式会社グランドポリマー), 13. Jun. 2000 (13. 06. 00), [特許請求の範囲], [0066], [0085] (ファミリーなし)	11, 20 12-19 1-10, 21-22, 25, 33

第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT 17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

特別ページ参照

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。

1 - 22, 25, 33

4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

第 II 欄の続き

請求の範囲 1 の特別な技術的特徴は、

「充填剤として、圧縮された充填剤を用い」、かつ、
「混練押出機として、二軸部の L/D が12以上であるスクリューを備え、かつ二軸部
端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機
を用いて」、

少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を溶融混練させ、熱可塑性樹脂組成物又はゴム組成物を製造する方法に係るものである。

なお、「充填剤として、圧縮された充填剤を用い」て、少なくとも熱可塑性樹脂と充填剤を溶融混練させ、熱可塑性樹脂組成物を製造する方法は、下記C欄に記載した刊行物1及び2に記載されているから、単に「充填剤として、圧縮された充填剤を用い」ることは、特別な技術的特徴には該当しない。

刊行物1：JP 4-306261 A(三井石油化学株式会社)26.Oct.1992(29.10.92)

[特許請求の範囲],[0026],[0032],[実施例]

刊行物2：JP 8-176339 A(帝人化成株式会社)09.Jul.1996(09.07.96)

[特許請求の範囲],[0010]

請求の範囲12-24、26-32及び34-38は、

「充填剤として、圧縮された充填剤を用い」、かつ、
「混練押出機として、二軸部の L/D が12以上であるスクリューを備え、かつ二軸部
端部においてせき止め構造を有する二軸混練部と、単軸押出部とからなる混練押出機
を用いて」

少なくとも熱可塑性樹脂及び／又はゴムと充填剤を溶融混練させ、熱可塑性樹脂組成物又はゴム組成物を製造する方法に係るものとは認められない。

したがって、これらの発明は、一又は二以上の同一又は対応する特別な技術的特徴を含む技術的な関係にないから、単一の一般的発明概念を形成するように連関していない。